

特表 2001-507501

(P 2001-507501A)

(43) 公表日 平成13年6月5日(2001.6.5)

(51) Int. Cl. 7

識別記号

F I

テーマコード(参考)

H 0 1 M 8/02

H 0 1 M 8/02

E

S

R

8/12

8/12

審査請求 未請求 予備審査請求 有

(全51頁)

(21) 出願番号 特願平10-514620  
 (86) (22) 出願日 平成8年9月20日(1996.9.20)  
 (85) 翻訳文提出日 平成11年3月21日(1999.3.21)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US96/15146  
 (87) 国際公開番号 WO98/12764  
 (87) 国際公開日 平成10年3月26日(1998.3.26)  
 (81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, L U, MC, NL, PT, SE), CA, JP, KR

(71) 出願人 シーメンス・ウェスチングハウス・パワー・コーポレーション

アメリカ合衆国, フロリダ州 32826-23  
 99, オーランド, エムシー-301, アラファ  
 ヤ・トレイル 4400

(72) 発明者 デデラー, ジェフリー, ディー

アメリカ合衆国, ペンシルベニア州 160  
 59, バレンシア, ディアスプリング・レー  
 ン 132

(72) 発明者 ヘイガー, チャールズ, エイ

アメリカ合衆国, ペンシルベニア州 160  
 46, マーズ, マクドナルド・ドライブ 1  
 36

(74) 代理人 弁理士 加藤 紘一郎

(54) 【発明の名称】 漏れのない内臓型炭化水素燃料改質器を有する電気化学的燃料電池発電装置

# (57) 【要約】

電気化学的燃料電池発電装置(10)は、各々が燃料電極(28)と、空気電極(30)と、これらの電極間の固体酸化物電解質(32)とを有する、複数の細長い燃料電池(26)を含む発電室(16)を備える。この発電室内の燃料電池を部分的に隔離する軸方向に細長い仕切り(58)のうち少なくとも1つ(60)は、発電反応の前に改質可能燃料ガス混合物を改質する。少なくとも1つの改質器兼仕切り(62)は中空であり、閉端部(70)と改質可能燃料混合物入口である開端部(68)を有する。改質可能燃料混合物は開端部から仕切りの閉端部へ流れ、そこで流れ方向を反転した後、中空の壁に沿って流れるにつれて改質され、最後に改質済み燃料として仕切りの開端部から排出される。さらに、改質器兼仕切りは、改質可能ガス混合物が仕切りを介して拡散するのを防止するため入口の所を除き改質器兼仕切りの外壁を取り囲んだ金属箔のガス拡散隔壁(76)を有する複合構造であり、この複合構造はまたガス拡散隔壁による燃料電池の短絡を防止するため入口の所を除き外側の絶縁ジャケット(78)内に収容されている。

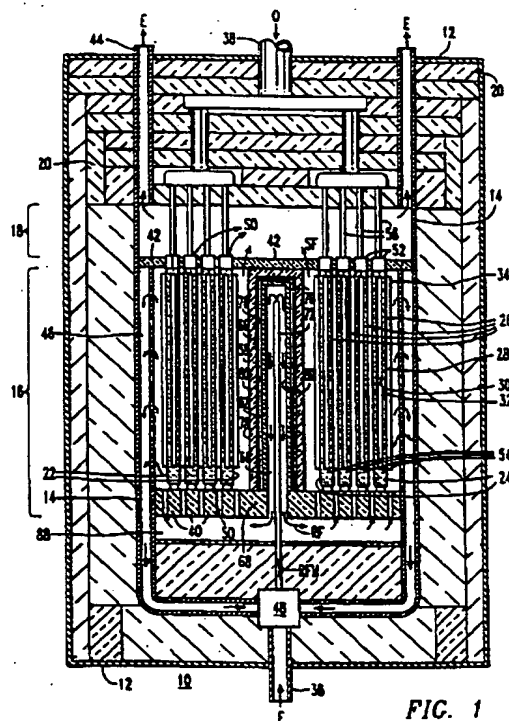


FIG. 1

**【特許請求の範囲】**

1. 各々が外側電極（28）、内側電極（30）及び両電極間の固体酸化物電解質（32）を有する、電氣的接続された細長い複数の電気化学的燃料電池（26）よりなる電気化学的燃料電池発電装置（10）であって、燃料電池の間にはそれらを隔離する細長い仕切り（58）が設けられ、さらに少なくとも1つの細長い仕切り（60）は長さ方向の一部（64）において中空であって、中実の細長い壁（62）内において開端部（68）との閉端部（70）を有し、その中空部分は改質用触媒物質（80）と、改質可能燃料混合物入口チャンネル（72）と、燃料電池への改質済み燃料出口チャンネル（88）を含み、中空の仕切りはさらに改質可能燃料混合物ガスが仕切りを通して燃料電池へ漏れるのを防止する手段を含む電気化学的燃料電池発電装置（10）。

2. ガスの漏れを防止する手段は、改質可能燃料混合物入口の所を除き金属箔の層（76）により囲まれた中空の仕切りを構成する中実の細長い壁（62）よりなり、中空の仕切り－金属箔サブアセンブリを形成する請求項1の装置。

3. 中空の仕切り－金属箔サブアセンブリはさらに細長いハウジング（78）との間の空間（92）により取り囲まれており、そのハウジングは長さ方向に中空（90）であって、中実の細長い壁内で開端部と閉端部とを有し、中空部分は中空の仕切り－金属箔中空ハウジングアセンブリを形成する中空の仕切り－金属箔サブアセンブリを形成する請求項2の装置。

4. 燃料電池（26）は管状で閉端部（54）と開端部（52）を有し、中空の仕切り（60）は燃料電池の開端部近くの閉端部（70）と燃料電池の閉端部近くの開端部（68）を有し、改質可能燃料混合物入口（72）は燃料電池の閉端部近くの中空の仕切りの開端部内に延びており、改質可能燃料混合物の入口は発電装置の改質可能燃料混合物チャンネル（48）を中空仕切り内の少なくとも1つの改質可能燃料混合物チャンネル（72）と、燃料電池への改質済み燃料出口を有する戻りチャンネル（88）とに接続する、請求項3の装置。

5. 中空の仕切り（60）及び中空のハウジング（78）は多孔質アルミナボードで製造されている、請求項3の装置。

6. 金属箔（76）はニッケル箔またはインコネル箔の少なくとも1つよりな

る請求項3の装置。

7. 改質用触媒物質(80)は白金またはニッケルのうちの少なくとも1つよりなる請求項3の装置。

8. 改質用触媒物質(80)は中空の仕切りの壁(62)の内壁上またはその内部にある請求項7の装置。

9. 改質可能燃料混合物入口チャンネルは中空の仕切り内に位置する細長い隔壁(74)により形成されている請求項3の装置。

10. 改質可能燃料混合物入口チャンネルは中空の仕切り内に位置する少なくとも1つの中空の導管(72)より形成されている請求項3の装置。

11. 中空の仕切り(100)は各々が長さ方向で中空であって中実の細長い壁内で開端部を有する複数の軸方向セグメント(102)よりなり、中空の部分は改質用触媒物質(106)を含み、各軸方向セグメントは軸方向に積み重ねられて、長さ方向の一部において中空であって中実の細長い壁内で開端部及び頂部の閉端部を有する最も頂部の軸方向セグメントで終端し、中空の部分は改質用触媒物質を含み、最も底部の軸方向セグメントは軸方向セグメントの中空部分の長さ方向に延びる改質可能燃料混合物入口チャンネルと、燃料電池への改質済み燃料出口チャンネルを含み、各軸方向セグメントはさらに軸方向に分割された金属箔の層(108)と、中空のハウジング(110)よりなる請求項3の装置。

12. ガスの漏れを防止する手段は、軸方向に分割された各部分(202)を積み重ねた細長い中実の壁部を有する中空の金属包囲体(212)を形成する中空の仕切り(200)の中実の細長い壁よりなり、中空の金属包囲体は燃料電池の開端部近くの閉端部と、燃料電池の開端部近くの開端部を有し、改質可能燃料混合物入口は燃料電池の開端部近くの中空の仕切りの開端部内に延び、改質可能燃料混合物入口は発電装置内の改質可能燃料混合物チャンネルを中空の仕切り内の少なくとも1つの改質可能燃料混合物チャンネルと燃料電池への改質済み燃料出口を有する戻りチャンネルに接続し、さらに中空の金属包囲体は細長い中実の壁に沿って絶縁材料(218)により絶縁されている請求項1の装置。

13. 中空の金属の包囲体(212)は軸方向に分割された少なくとも2つの軸方向の金属包囲体部分、即ち上方の包囲体部分と下方の包囲体部分よりなり、

下方の包囲体部分は2つの開端部を有し、上方の包囲体部分は開端部と上方の開端部を有し、さらに下方の包囲体部分の開端部は上方の包囲体部分の開端部に金属製の軸方向セパレータ(214)とベローズ(216)とにより接続され、さらに金属包囲体部分は絶縁材料(218)により絶縁されている請求項12の装置。

14. 金属包囲体部分(212)はインコネルにより製造されている請求項12の装置。

15. 絶縁材料(218)はアルミナペーパーと溶射されたセラミックの少なくとも1つよりなる請求項12の装置。

16. 軸方向に分割された中空の仕切り(302)は結合棒(312)より結合される請求項12の装置。

17. 高温固体酸化物燃料電池発電装置(10)であって、各々が外側燃料電極(28)、内側空気電極(30)及びこれら2つの電極間に介在する固体酸化物電解質(32)を有する電氣的接続され平行に設置された複数の細長い燃料電池(26)を含み、電氣的接続された1または2以上の燃料電池の束(22)、(24)を備えた細長い発電室(16)を含むハウジング(12、14)と、内側空気電極への新鮮な酸化剤ガス入口(38)と、燃料電極への新鮮な炭化水素燃料入口(36)と、発電室に接続され使用済み燃料ガスを使用済み酸化剤ガスと結合させて燃焼させる燃焼室(18)と、燃焼室を大気に接続する少なくとも1つの燃焼済み排気ガスチャンネル(44)と、発電室を新鮮な炭化水素ガス入口からの新鮮な炭化水素供給燃料と使用済みガスを結合して改質可能燃料混合物を形成させる混合室(48)と接続する少なくとも1つの使用済みガス再循環チャンネル(46)とよりなり、改質可能燃料混合物チャンネル(48)は、混合室から発電室の軸方向に、燃料電池間に位置してそれらを分離する少なくとも1つの細長い仕切り(58)内へ延び、少なくとも1つの細長い仕切り(60)は長さ方向部分(64)において中空であって、中実の細長い壁(62)内で開端部(68)と閉端部(70)を有し、中空の部分は改質用触媒物質(80)と、燃料電池への改質済み燃料出口チャンネル(88)を有し、中空の仕切りはさらに改質可能燃料混合物入口チャンネルの所を除いて、金属箔の層(76)と、

距

離（92）だけ離隔した細長いハウジング（78）とにより取り囲まれ、ハウジングは長さ方向において中空（90）であって、中実の細長い壁内で開端部と閉端部を有し、中空の部分は中空の仕切り（62）と金属箔（76）を有する発電装置。

18. 燃料電池（26）は、ドーブ済み亜マンガ酸ランタンよりなる空気電極（30）と、イットリアまたはスカンジウムをドーブしたジルコニアよりなる固体酸化物電解質（32）と、ニッケル-ジルコニアサーメットよりなる燃料電極よりなる請求項18の装置。

19. 金属箔の層（76）はニッケル箔またはインコネル箔の少なくとも1つよりなり、中空の仕切り（62）及び中空のハウジング78は共に多孔質アルミナボードよりなり、改質用触媒（80）は中空の仕切りの中空のチャンネルの壁の上に含浸されている請求項19の装置。

## 【発明の詳細な説明】

漏れのない内臓型炭化水素燃料改質器を有する電気化学的燃料電池発電装置

### 1. 政府契約

アメリカ合衆国政府は、米国エネルギー省が結んだ契約第DE-FC21-91MC28055号によって、本発明に関し権利を有する。

### 2. 発明の分野

本発明は、固体電解質燃料電池よりなり発電所として空気と燃料ガスから発電を行う電気化学的発電装置の分野及びかかる装置の構成に係わる。さらに詳細には、本発明は、発電装置の燃料電池スタック内で電気化学的に処理される前に、供給される炭化水素燃料の状態を予め調整する内臓型炭化水素燃料ガス改質器を有する高温固体酸化物電解質燃料電池発電装置の分野及びその構成に係わる。本発明は、さらに詳細には、高温固体酸化物電解質燃料電池発電装置の燃料電池スタック内で使用され、炭化水素改質器及び燃料電池スタック隔壁の二重の機能を有する内臓型炭化水素改質器の分野及びその改良型構成に関する。本発明は特に、燃料ガスの漏れを少なくし構造的健全性を向上させるガス隔離手段を備えた内臓型炭化水素燃料改質器兼燃料電池スタック隔壁を提供する。

### 3. 発明の背景

高温固体酸化物電解質燃料電池及びマルチセル発電装置やその構成は周知であり、米国特許第4,395,468号(Isenberg)及び4,490,444号(Isenberg)に教示されている。固体酸化物燃料電池発電装置は、炭化水素から取り出される化学燃料を直流電気に変換するように設計されている。従来、固体酸化物燃料電池発電装置は、固体酸化物電解質に十分な導電性をもたせて発電作用のある電気化学的反応を行わせるために、約600℃と1200℃の間、さらに詳細には約800℃と1050℃の間の温度で運転される。

かかるマルチセル発電装置は、電気接続された複数の管状固体酸化物燃料電池が燃料電池スタックとしても知られるアルミナボードのハウジングで画定された発電室内に配置され、酸化剤ガスと改質済み炭化水素燃料ガスにさらされるもの

である。大型のマルチセル発電装置は、米国特許第4,876,163号(Reich

ner)及び4, 808, 491号(Reicnner)に記載されるように、アルミナボードのような絶縁材の隔壁が個々の燃料電池間或いは複数の燃料電池の束の間に配置されてそれらの間を断熱且つ電氣的絶縁し、また発電装置内の構造支持体として働く。これらの隔壁は通常、12個から36個の燃料電池を含むことの多い電池束の列を仕切るために使用される。

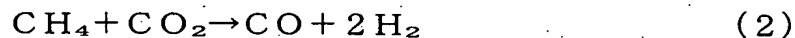
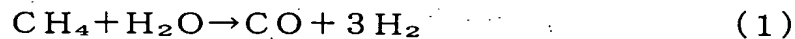
マルチセル発電装置の特徴は、細長い複数の管状固体酸化物燃料電池が平行な電池束を形成するように配置されていることである。管状の各固体酸化物燃料電池は、例えばストロンチウムをドーブした亜マンガ酸ランタンの多孔質内側空気電極を含む。この空気電極を、例えばイットリア安定化ジルコニアの緻密で気密の固体酸化物電解質が、電池の活性長さ全体に沿って延びる細条部を除き覆っている。この露出した細条部は、隣接する燃料電池または電力用接点への接触領域として働く、例えばマグネシウムをドーブした亜クロム酸ランタンの緻密で気密の相互接続層で覆われている。この固体酸化物電解質は、相互接続部の近傍を除いて、例えばニッケル-ジルコニアサーメットの多孔質燃料電極により覆われている。使用済み燃料は使用済み酸化剤と別の燃焼室で結合して燃焼し、高温の排気ガスとして発電装置から排出される。

これらの高温固体酸化物マルチセル発電装置は、空気と燃料が結合して電気化学的反応により熱と電気を発生させる。この燃料は、石炭から抽出した燃料ガス、天然ガス、蒸留燃料のような化石燃料から取り出すことができる。固体酸化物燃料電池はそれぞれ、空気と接触し酸素イオンが形成される燃料電池の空気電極(カソード)から空気電極と燃料電極の間の固体酸化物電解質を介して燃料電極(アノード)へ酸素イオンを容易に通すものである。酸素イオンは、改質済み炭化水素燃料ガスから取り出した一酸化炭素(CO)及び/または水素(H<sub>2</sub>)と反応して電子を放出することにより発電を行う。

しかしながら、発電装置の燃料電池用燃料として、メタン、エタン、天然ガス(大部分がメタンの他にエタン、プロパン、ブタン及び窒素を含む)のような炭化水素混合物、ナフサのような気化石油留出物、またはエチルアルコールのようなアルコール類を含む炭化水素燃料を直接使用するのは問題がある。これらの炭

化水素を燃料ガスとして直接用いると、発電装置の燃料電池及び他の成分上に炭素が堆積しまたススとなり、望ましくないことに、燃料電池の効率が低下すると共に適性な発電動作の障害となり得る。例えば、燃料電池上の炭素堆積物は多孔質電極のガス伝搬路を塞ぎ、電極間に電氣的短絡を発生させることがある。絶縁材のような他の発電装置の成分上に炭素が堆積すると、絶縁効率が減少して、電池束間を分離する絶縁物を介して電氣的短絡路が形成される。

従って、燃料電池発電装置に供給される燃料は一般的に、一酸化炭素 (CO) と水素 (H<sub>2</sub>) に限られている。一酸化炭素燃料及び水素燃料は炭化水素燃料ガスを改質することによって得られる。改質は、改質可能な炭化水素燃料を水蒸気及び／または炭酸ガスと結合させて一酸化炭素及び水素を発生させるプロセスである。例えば、水と炭酸ガスを用いてメタンを改質する反応は下記の式 (1) 及び (2) で与えられる。



従って、燃料電池発電装置に有害な影響を与えずに炭化水素燃料を効率良く使用するためには、新鮮な炭化水素燃料ガスを、通常、循環される使用済み燃料ガスから得られる水蒸気及び／または炭酸ガスと結合させて改質可能な燃料混合物を形成する。この改質可能な燃料混合物を、通常は白金またはニッケル化合物でありペレット状またはボード状アルミナの上に担持された改質用触媒を用いて改質する、即ち一酸化炭素と水素に転換する。この改質済み燃料を、発電装置の燃料電池スタックの固体酸化物燃料電池のための燃料ガスとして使用する。

炭化水素の改質は吸熱反応 (即ち、熱を必要とする) であるため、この反応には熱を供給しなければならない。燃料電池発電装置の外部で炭化水素燃料を改質すると、改質器及び発電装置と改質器を結ぶ導管内で熱としてのエネルギーが失われ、発電装置システムがさらに複雑になる (即ち、熱交換器、ポンプ及び大きなスペースが必要になる) と共に全体コストが上昇するため、望ましくない。米

国特許第4, 128, 700号は、燃料電池発電装置の外部における燃料の改質に関するものである。発電装置の内部で炭化水素燃料を改質しようとする試みが



あるが、これは特に、燃料改質の適温が固体酸化物燃料電池の運転温度である約600℃乃至1200℃、さらに詳細には約800℃乃至1050℃に近い約900℃乃至1000℃の範囲にあるという理由で望ましいことである。

米国特許第4,374,184号(Somers, et al.)は、この問題を、管状の各燃料電池に意図的に形成した不活性端部上で内部改質を行うことで解決している。この方法によると、燃料電池スタック内の過大な温度勾配が幾分緩和される。しかしながら、この方法は燃料電池スタック内の燃料電池活性領域を著しく減少させる。米国特許第4,729,931号(Grimble)は、燃料電池の発電室の近傍で燃料電池スタックの外部にある触媒室内に配置した、細かく砕いたニッケルまたは白金のような炭化水素燃料改質用触媒充填物により内部改質を行っている。この構成は、炭化水素燃料ガスをノズルに供給して水蒸気及び炭酸ガスを含む使用済み循環燃料ガスと混合し、この改質可能なガス混合物を発電室の側部に沿ってそれと熱交換関係で搬送して改質の行われる触媒充填物内へ導いた後、改質済みガスを発電室内の燃料電池燃料プレナムへ送る。米国特許第4,808,491号(Reicnner)は、改質用熱源として発電装置の排気ガスを用いて内部改質を行うが、この排気ガスは燃料電池スタックの外部であるが燃料電池の閉端部直下の改質用触媒と熱交換関係で送られる。

上述した内部改質法にとって、燃料電池スタック及び改質器内に過大な温度勾配を発生させることなく吸熱改質反応に要する熱を移送させるのは依然として解決困難な課題である。温度勾配が過大になるのを防止するためには、燃料電池へい送る空気の流量を燃料との電気化学的反応に要する量以上に増加させなければならない。この熱移送の問題の1つの解決法が米国特許第4,983,471号(Reicnner et al.)に記載されているが、この特許では改質可能な燃料混合物用のチャンネルが燃料電池スタックの軸方向長さを延びている。高温の使用済み循環燃料ガスと改質すべき新鮮な炭化水素燃料を混合した改質可能な燃料混合物がこのチャンネルに送り込まれ、入口ポートを通過して燃料電池スタック内に入り燃

料電池を長さ方向に流れる。燃料電池スタック内で、改質可能な混合物は燃料電

池の長さに方向に分散する改質材と接触するが、この混合物は燃料電池と接触する前に多孔質隔離板上に含浸させたニッケルのような改質材を横断方向に通過する。

この問題の別の解決法が米国特許第5,082,751号(Reichner)に記載されているが、この特許では固体酸化物燃料電池発電装置の内部における改質を燃料電池スタック内の個々の燃料電池の改質器兼仕切りまたは個々の電池束の改質器兼仕切りの上で行う。この設計は、燃料電池スタック内の細長い管状燃料電池または電池束を、改質用触媒を被覆または含浸したアルミナボードのような多孔質アルミナ絶縁材で作成できる細長い隔壁によって仕切らせている。改質器兼仕切りボードは、個々の燃料電池または電池束を内部で構造的に支持し、発電装置の固体酸化物燃料電池への燃料として改質可能な炭化水素燃料混合物を改質するという二重の目的を有する。Reichnerのこの米国特許第5,082,751号は、改質器兼仕切りが細長く燃料電池の束の間に配置されているため電池束間に仕切り壁を形成する。改質器兼仕切りはさらに、その長さの所定部分が中空であり、改質用触媒が含浸してあるため電池束にさらされる中実の細長い隔離壁を有する改質チャンネルを形成する。改質済み燃料を固体酸化物燃料電池の下の燃料入口プレナムへ送れるように、改質チャンネルへの改質可能燃料混合物の入口と、改質済み燃料ガス出口とが形成されている。この内臓型改質器の構成は、改質器の熱消費が燃料電池の束間の多数の場所において燃料電池の軸長方向に分散されるものである。従って、熱交換領域は著しく増加し、余分の流量の空気を送ることにより除去する余分の熱量が著しく減少する。この構成はまた、燃料電池の束の間にすでに存在するスペースを利用するため、燃料電池の活性領域の減少をきたさない。

Reichnerのこの米国特許第5,082,751号による装置を運転すると、未改質の炭化水素燃料が改質器兼仕切りボードを介して燃料電池のスタック内へ漏れる。これは、この内臓型改質器兼仕切りを備えた装置の効率にとって無視することのできない問題である。この燃料の漏れは、これら改質器兼仕切りボードが多孔質(低密度)アルミナ絶縁材で作られていることによる。未改質燃料が燃料

電池スタックへ漏れると、燃料電池及び発電装置の他の構成要素の上に炭素が堆積することになり、望ましくない。多孔質のアルミナボードを通して未改質燃料が漏れるのを防止するために、改質器兼仕切りボードの外面上の脆いセラミックの被膜を緻密にするかまたはプラズマ溶射することが試みられているが、不成功に終わっている。この試みは、アルミナボードだけでなく外部の被膜に割れが生じるため漏れを著しく減少させることができない。この割れは、アルミナボードの表面上の大きな温度勾配により生じる熱応力、またはアルミナボードの温度勾配によるそりにより発生する。

かくして、発電装置の燃料電池スタック内で炭化水素燃料を改質する共に、従来設計の装置に付随する未改質燃料の漏れを発生させずに燃料電池または電池束を支持しながら仕切る、高温固体酸化物燃料電池発電装置用の内臓型炭化水素改質器に対する需要が存在する。

本発明は、炭化水素燃料用改質器としてだけでなく燃料電池スタックの仕切壁として働く二重の機能を有する電気化学的燃料電池スタックの内臓型改質器兼仕切りの改良型構成を提供する。本発明において、発明者等は、特に改質器兼仕切りボードを介する炭化水素燃料の漏れ、熱膨張を受ける際のそのボードの構造的健全性、及びそのボードの製造容易性の問題を解決した。

#### 4. 発明の概要

本発明の目的は、従来設計に付随する問題を解決する、燃料電池スタック内の内臓型炭化水素改質器兼仕切りを有する電気化学的燃料電池発電装置を提供することにある。

本発明の別の目的は、未改質炭化水素燃料が改質器兼仕切りボードを介して燃料電池スタック内の燃料電池へ漏れるのを著しく減少させた電気化学的燃料電池発電装置の内臓型炭化水素改質器兼仕切りを提供することにある。

本発明のさらに別の目的は、高温固体電解質燃料電池発電装置の燃料電池スタック内の内臓型炭化水素改質器兼仕切りであって、炭化水素燃料ガスの改質器としてだけでなく個々の燃料電池または電池束の隔壁として働き、未改質燃料の燃料電池スタックへの漏れを防止するガス隔壁手段を備え、この隔壁手段が燃料電池スタックと改質器の間の温度勾配による熱膨張を阻止しない構造である内臓型

改質器兼仕切りを提供することにある。

本発明の利点の1つは、改質器兼仕切りから燃料電池への未改質燃料の漏れが著しく減少することである。

本発明の別の利点は、改質器兼仕切り内での熱膨脹が許容されるため改質器兼仕切りの構造的健全性が向上する点にある。

従って、本発明は、高温固体酸化物電解質燃料電池発電装置のような電気化学的発電装置であって、各々が外側燃料電極、内側空気電極、及びそれらの間の固体酸化物電解質を含む電気的に接続された細長い複数の燃料電池の1または2以上の束よりなる燃料電池アセンブリを収容した発電室と、燃料を外側燃料電極の外側へ送るための発電室への新鮮な炭化水素燃料ガス入口と、酸化剤を内側空気電極へ送るための発電室への酸化剤ガス入口と、発電室からの水蒸気及び／または炭酸ガスを含む使用済み燃料が新鮮な炭化水素燃料と混合される少なくとも1つの使用済み燃料ガス出口チャンネルと、発電室からの使用済み燃料と使用済み酸化剤とを燃焼させるための発電室と、燃焼室からの少なくとも1つの燃焼済みガス排気チャンネルとよりなり、発電装置はさらに、燃料電池または電池束の軸方向に沿って燃料電池または電池束の間に軸方向に位置してそれらの間の隔壁を形成する1または2以上の細長い仕切りを有し、少なくとも1つの細長い仕切りの内部には長さ方向の選択部分に沿って中空のチャンネルが設けられ、中空の細長い仕切りは中実の細長い壁と、中空のチャンネル内で改質される改質可能な燃料を送るための改質可能燃料混合物入口と、改質済み燃料を燃料電池に送るための改質済み燃料出口と、中空のチャンネル内の改質用触媒物質とを含み、仕切りにはその熱膨脹を阻止することなく燃料電池への未改質燃料混合物ガスの漏れを防止する手段が設けられていることを特徴とする発電装置に関する。

本発明は、さらに詳細には、高温固体酸化物燃料電池発電装置の燃料電池スタック内の内臓型改質器であって、1または2以上の改質器兼仕切りが細長い燃料電池または燃料電池束の間を燃料電池スタックの軸方向に延びてそれらを隔離し、1または2以上の改質器兼仕切りは中空であって、中実の外壁を有する中空領域に改質用触媒物質を含浸してあり、さらに中空領域への改質可能燃料混合物入口と、中空領域から燃料電池への改質済み燃料出口と、改質器兼仕切りの外壁を

介

する未改質燃料ガスの漏れを防止する手段とを含み、さらに中空の改質器の壁を改質可能燃料混合物入口の所を除いて、ニッケル箔、インコネル箔または適当なニッケル系合金箔で取り囲むことにより未改質燃料ガスが燃料電池へ拡散するのを防止する隔壁が形成され、さらに改質可能燃料混合物入口の所を除いて、金属箔の層を改質器と同じ材料で形成したハウジングで取り囲むことにより発電装置の短絡を防止することを特徴とする改質器に関する。

#### 5. 図面の簡単な説明

添付図面は本発明の現在において好ましいある特定の実施例を示す。本発明は開示した実施例に限定されず、後記の請求の範囲の精神及び範囲内で種々の変形が可能である。

図1は、本発明による電気化学的発電装置の一実施例の側断面図であり、複数の燃料電池よりなる2つの燃料電池束、及び燃料の漏れが実質的にないこれらの束を隔離するガス隔壁を備えた改質器兼仕切りボードを示す。

図2は、本発明による電気化学的燃料電池の部分拡大側断面図であり、複数の燃料電池よりなる2つの燃料電池束、及び燃料の漏れのないこれらの束を隔離するガス隔壁を備えた改質器兼仕切りボードを示す。

図3は、燃料電池スタック内の燃料電池間または燃料電池束間に設置可能な本発明の内臓型改質器兼仕切りボードの側面図であり、ガス隔壁が複数部品で構成される態様を示すために一部を切り欠いて示す。

図4は、図3の線4-4に沿う改質器兼仕切りボードの底面図である。

図5は、図3の線5-5に沿う改質器兼仕切りボードの頂面図である。

図6は、図3の線6-6に沿う改質器兼仕切りボードの側断面図である。

図7は、燃料電池スタック内の燃料電池間または燃料電池束間に設置可能な本発明の別の実施例による内臓型改質器兼仕切りボードの側面図であり、ガス隔壁が複数部品で構成される態様を示すために一部を切り欠いて示す。

図8は、図7の線8-8に沿う改質器兼仕切りボードの底面図である。

図9は、燃料電池スタック内の燃料電池間または燃料電池束間に設置可能であ

り、ガス隔壁を備えた本発明の内臓型改質器兼仕切りボードのさらに別の実施例である。

図10は、燃料電池スタック内の燃料電池間または燃料電池束間に設置可能であり、ガス隔壁を備えた本発明のさらに別の実施例である。

#### 6. 本発明の好ましい実施例の詳細な説明

図1は、電気化学的発電装置の一例、例えば高温固体酸化物電解質燃料電池(SOFC)発電装置を示す。外側ハウジング(12)は電気化学的発電装置全体を取り囲んでいる。外側ハウジングはスチールのような金属で製造できる。内側ハウジング(14)は、発電室(16)及び燃焼室(18)を含む複数の区画室を取り囲んでいる。内側ハウジング(14)は、インコネル(Inconel)等の耐高温・耐酸化性金属で製造できる。一般的に、外側ハウジング(12)の内側及び全ての区画室の周りは断熱材(20)で内張してある。この断熱材(20)は、アルミナのフェルトまたはアルミナ断熱ボードのような低密度のアルミナ材で製造可能である。

発電室(16)（「燃料電池スタック」とも呼ばれる）は電池の束を1または2以上収容するが、図示の例の2個の電池束(22)、(24)はそれぞれ平行に配置され、好ましくは管状で細長い複数の電気化学的電池(26)、例えば高温固体酸化物電解質燃料電池(SOFC)よりなる。各燃料電池(26)は、細長い外側表面を覆う多孔質の外側燃料電極(28)（「アノード」とも呼ぶ）、細長い内側表面を覆う多孔質の内側空気電極(30)（「カソード」とも呼ぶ）、燃料電極(28)と空気電極(30)の間に介在する緻密で気密の固体酸化物電解質(32)を含む。内側空気電極(30)はペロブスカイト族のドーパ済みセラミック、例えばストロンチウムをドーパした亜マンガ酸ランタン( $\text{LaMnO}_3$ )よりなり、固体酸化物電解質(32)は緻密で気密の、イットリアまたはスカンジウムで安定化ジルコニアよりなり、外側燃料電極(28)は多孔質のニッケル-ジルコニアサーメット( $\text{ZrO}_2$ )よりなる。

内側空気電極(30)はカルシア安定化ジルコニアの多孔質セラミック支持管(図示せず)上に支持させてもよいが、この支持管はオプションである。一般的

に、外側燃料電極（28）及び固体電解質（32）は共に、隣接の燃料電池（26）との電氣的接続手段を提供する相互接続部（図示せず）を空気電極（30）上に形成できるように、内側空気電極（図示せず）の軸方向に沿って選択した部分において不連続である。相互接続部はマグネシウムをドープした亜クロム酸ランタン( $\text{LaCrO}_3$ )で形成することが可能であり、またニッケル-ジルコニアサーメットの被膜（図示せず）を含むものでもよい。隣接する燃料電池（26）の相互接続部を介する電氣的な接続は、燃料電池の活性長さ部分に沿って配置した多孔質の金属フェルト（34）、例えばニッケル繊維のフェルトにより、好ましくは外側表面間を直接接触させることにより向上する。

図示のように、各燃料電池（26）は管状であるが、勿論平板状のような他の構成も実現可能である。また、空気電極（30）と燃料電極（28）の相対的位置を逆転させるのも、燃料電極に燃料を接触させ空気電極に空気または酸素を接触させるかぎり問題ないことが理解されるであろう。

外側ハウジング（12）及び断熱材（20）を、電氣的リード線の入口（図示せず）及び燃料及び酸化剤である電気化学的反応剤のポートが貫通する。反応剤である新鮮な炭化水素燃料の入口ポート（36）は、図示のように炭化水素燃料（F）を通過させるものであり、この供給燃料（F）は一般的に大部分がメタンよりなる未改質の天然ガスである。後でさらに詳細に説明するように、炭化水素燃料（F）は、外側燃料電極上に送られる前に改質チャンネルのような燃料調整用の一連の導管を通過するように差し向けられる。また、新鮮な酸化剤入口ポート（38）は、図示のように、酸化剤（O）を通過させるものであり、酸化剤（O）は一般的に空気または酸素である。後で詳説するように、酸化剤（O）は内部の空気電極上に送られる前に一連の導管を通るように差し向けられる。

発電室（16）は、燃料分配プレート（40）と多孔質隔壁（42）の間に位置する。多孔質隔壁（42）は、燃料電池の外側を通過した（SF）で示す一部が反応した使用済み燃料ガスが発電室（16）から流れ出ることができるように設計されているが、その使用済み燃料ガスは、燃焼室18において、燃料電池の内側を通過した（SO）で示す一部が反応した使用済み酸化剤と反応し燃焼して

(E) で示す高温の燃焼済み排気ガスとなる。この燃焼済み排気ガスは、燃焼済み排気チャンネル(44)を介して大気中に排出される。燃焼済み排気チャンネルは、インコネルのような耐高温・耐酸化性金属で形成することが可能である。燃焼室(18)へ送られなかった水蒸気及び／または炭酸ガスを含む使用済み燃

料(SF)の一部は、使用済み燃料循環チャンネル(46)を介して混合室(48)へ送られ、そこで新鮮な炭化水素燃料(F)と結合することにより改質可能な燃料混合物(RFM)となるが、これにより燃料改質反応に必要な酸素種が供給されると共に未改質炭化水素燃料(F)の改質が容易になる。使用済み燃料循環チャンネルは、インコネルのような耐高温・耐酸化性金属で形成可能である。燃料分配プレート(40)の間には、改質済み燃料ガスを燃料電池スタック(16)内の燃料電池(26)の燃料電極(28)へ送るための発電室入口ポート(50)が離隔して設けられている。

好ましくは管状で、細長い燃料電池(26)は、燃料分配プレート(40)と多孔質隔壁(42)の間の発電室内を延びる。各燃料電池(26)は燃焼室(18)内にある開端部52と、燃料分配プレート(40)近くの発電室(16)内にある閉端部(54)を有する。燃料電池(26)の開端部には、酸化剤立ち管のような酸化剤導管(56)がその中を延びる。

かかる燃料電池発電装置(10)において、発明者等は、改良型改質器兼分離器(「改質器兼仕切り」とも呼ぶ)を用いることにより、燃料改質前に未改質燃料が燃料電池スタック内にほとんど漏れしないようにして、燃料電池(26)の燃料電極(28)に接触する前の新鮮な炭化水素燃料ガス(F)を燃料電池スタック(16)の内部で改質して改質済み燃料(RF)にする新しい方法を発見した。本発明の改質器兼仕切りは、燃料電池スタック内の燃料電池(26)または電池束(22, 24)の隔壁となるだけでなく他の発電装置構成要素を支持すると共に改質器兼仕切りボードの細孔による燃料電池スタック(16)への未改質燃料ガス(F)の望ましくない漏れが実質的になくなるようにする。この改質器兼仕切りの構成は、そのボードの熱膨張による望ましくない構造的な劣化を実質的に防止する。



本発明の1つの構成によると、電池束(22, 24)を形成する好ましくは管状で、細長い複数の燃料電池(26)が多孔質隔壁(42)と燃料分配プレート(40)の間を延びる細長い隔壁(58)により隔離される。これらの隔壁(58)は適当な厚さの多孔質アルミナボードの中実片から製造可能であり、燃料電池スタックの区画を形成し、発電装置内の構造的健全性を与えるように燃料電池

スタック(16)内に配置されている。本発明では、少なくとももう1つの隔壁を図示のような二重目的を有する改質器隔壁(60)として用いる。

改質器兼仕切り(60)は、燃料電池スタック内の個々の燃料電池(26)の間または電池束(22)、(24)の間を通過して多孔性隔壁(42)と燃料分配プレート(40)の間を延び、燃料電池(26)の外側燃料電極(28)へ送られる前の新鮮な炭化水素供給燃料(F)を改質して改質済み燃料(RF)にする手段を構成する。この改質器兼仕切り(60)は、多孔性アルミナボードで製造可能である。米国特許第5,082,751号(Reicnner)に記載された燃料電池スタック内の従来型改質器兼仕切りとは異なり、この改質器兼仕切り(60)は、未改質燃料ガス(F)が多孔質アルミナボードの外壁を漏れて、改質済み燃料(RF)へ改質される前に外側燃料電極(28)へ到達するのを防止する有効な手段を含む。改質器兼仕切りボード(60)は、後で詳説するガス拡散防止隔壁手段を具備するが、この隔壁手段が拡散によるガスの漏れを防止する。また、この隔壁手段は、熱膨張による改質器兼仕切りボード(60)の構造的劣化を防止する構成になっている。

図2を参照して、各改質器兼仕切り(60)は中実の細長い壁(66)により囲まれた中空内側チャンネル(64)を有する内側ボード(62)を含み、その内側チャンネルは燃料電池(26)の閉端部(54)の近傍にある改質可能燃料ガス混合物(RFM)(例えば、使用済み燃料と混合した天然ガス)の入口または開端部(68)と、燃料電池(26)の開端部(52)の近傍の開端部(70)とを有する。内側チャンネル(64)は、例えば細管(72)または隔壁(74)により形成することが可能であり、これらの構成は共に、改質可能燃料混合物(RFM)が改質器兼仕切り(60)の内部を流れて上方の開端部(70)へ

突き当たった後、逆方向に流れて底部の開端部（68）から燃料分配プレナム（88）及び燃料電池（26）の閉端部（54）の近傍の燃料ポート（50）を介して燃料電池スタック（16）の燃料電池（26）へ改質済み燃料として流れるようになっている。本発明の改質器兼仕切り（60）はまた、開端部または入口（68）の所を除き中実の細長い壁（66）を実質的に囲むガス隔壁手段76と、改質器兼仕切り（60）及びガス隔壁アセンブリ（76）を開端部または入口

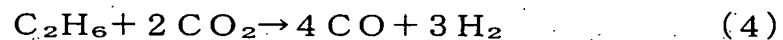
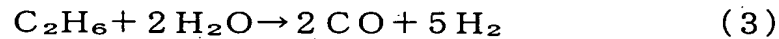
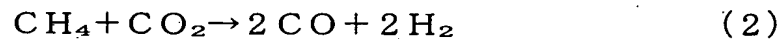
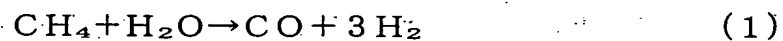
（68）の所を除き実質的に囲む外側ボードハウジング（78）とを有する。

図示のように、導管（72）を使用する場合、改質可能燃料混合物（RFM）は、入口（68）から立ち管（72）の内部を通して頂部から流れ出た後、閉端部（70）の近くで方向転換して改質器兼仕切り（60）を逆方向に流れ、入口（68）の所で改質済み燃料（RF）として排出される。単一の隔壁（74）を使用する場合、改質可能燃料混合物（RFM）は、入口（68）から隔壁の一方の側に沿ってその隔壁と仕切り（60）の壁により形成されたチャンネルを流れた後、隔壁の頂部で方向転換し、改質器兼仕切り（60）内をその隔壁と仕切りのもう一方の壁により形成されるチャンネル内を逆方向に流れる。

改質用触媒物質は、改質器兼仕切り（60）の断面内において、例えば中空の改質器兼仕切りの内壁（80）上またはその内部の被膜として、若しくは改質可能燃料立ち管と改質器兼仕切りの側壁の間の区画室領域（82）内或いは隔壁（74）により形成される供給側（84）及び／または戻り側（86）、即ち隔壁の一方の側もしくは両側に設けた充填物として配設される。改質用触媒物質は（80、82、84または86）において炭化水素供給燃料（F）の改質を行える触媒を含み、一部（82、84または86）において触媒床として用いる場合ガスの流れを過度に制限するようにぎっしり充填すべきではない。改質用触媒物質は白金とニッケルのうちの少なくとも一方を含有するのが好ましく、最も好ましくはニッケルを含む。改質用触媒物質は、薄膜、被膜、金属繊維、大きい表面積をもつペレットまたは粒子状のものを単独で或いはアルミナのフィラメントと共に用いるか、もしくはアルミナのフィラメント上の被膜として用いる等が可能であり、また炭素の堆積を制限するのに役立つ有効量の添加物を含有させるように

してもよい。

改質は、改質可能炭化水素燃料（F）を水蒸気及び／または炭酸ガス、好ましくは使用済み燃料（SF）から得たものと混合することにより、炭化水素燃料についての改質用触媒物質と接触させると、好ましくは約900℃の高温環境で一酸化炭素（CO）と水素（H<sub>2</sub>）となる改質可能燃料混合物（RFM）を発生させるプロセスである。例えば、メタンとエタン（天然ガス）の改質を下記の式（1）－（4）で示す。



一般的に、炭素の堆積傾向を減少させるために改質可能燃料混合物（RFM）に余分の水を与える。改質後、この燃料（RF）は改質器兼仕切り（60）から排出されて、分配プレナム（88）、及び燃料電池（26）の底部の閉端部（54）の近傍において燃料分配プレート（40）に形成した燃料スタック入口ポート（50）を通り、燃料電池（26）と接触する。

好ましい実施例において、これらのチャンネルはくりぬいたアルミナ仕切りボード内の一連の中空セラミックまたは耐高温金属（インコネルのような）製の導管（72）であり、これらの導管とアルミナボードの内壁の間の区画室領域内には改質用触媒として作用するニッケル粒子が含まれている。

改質済み燃料（RF）は、燃料電池（26）の閉端部（54）の近傍のポート（50）を介して発電室（16）に流入し、燃料電池の周面上を流れる間燃料電極（28）と接触する。改質済み燃料（RF）は、酸化剤（O）、例えば空気電極（30）から固体電解質（32）を透過した空気と電気化学的に反応し、使用済み燃料（SF）として消耗した状態で多孔性隔壁（42）へ到達する。高温で消耗した状態の使用済みの燃料（SF）は隔壁（42）を介して予熱燃焼室（18）へ流入し、そこで燃料電池の内側から戻ってきた、酸素が欠乏した状態の空気または使用済み酸化剤（SO）と直接反応する。消耗した燃料及び空気に含ま

れたかなりの熱及び反応による生じた熱を利用して、流入する酸化剤を予熱する。燃料と空気が直接相互作用した結果得られた生成物はこの予熱室から排出され、これらの生成物に含まれる熱エネルギーは、例えば従来の金属製熱交換器に流入

する反応剤の予熱に利用される。

燃料電池スタック(16)に含まれる各燃料電池(26)には、例えば $H_2$ 、 $CO$ 、 $CH_4$ 、天然ガス等の燃料ガスと、空気または酸素のような酸化剤が約800℃乃至1200℃の温度で供給される。酸化剤は燃料電池内の一連の電気化学的反応により燃料を電気化学的に酸化して、直流電気エネルギー、熱及び水蒸気だけでなく、副生成物として消耗した(即ち、一部が反応済みの)使用済みの燃料及び使用済み酸化剤を生成する。各燃料電池は一般的に、1ボルト以下のどちらかといえば小さい開放回路電圧を発生するため、多数の燃料電池を少なくとも直列に、好ましくは直並列矩形アレーの形に電気接続して高い出力電圧を発生させる。燃料電池、燃料電池発電装置、その電氣的相互接続部及びそれらの構成及び材料の詳細な説明については、全体を本願明細書の一部を構成するものとして引用する米国特許第4,395,468号(Isenberg):4,490,444号(Isenberg):4,751,152号(Zymboly)を参照されたい。

酸化剤(O)は、酸化剤入口ポート(38)から燃料電池の開端部(52)内に挿入された供給用導管(56)を介して流入し、内側空気電極(30)と接触する。また、水素( $H_2$ )及び一酸化炭素( $CO$ )のような改質済み燃料(RF)は、燃料電池の外側を流れて外側燃料電極(28)と接触する。約600℃乃至1200℃、最適温度は800℃乃至1050℃である燃料電池運転温度において、空気電極(30)と固体酸化物電解質(32)の界面に発生する酸素イオンは電解質(32)を透過し、燃料電極(28)と固体酸化物電解質(32)の界面で改質済み燃料(RF)と結合する。改質済み燃料(RF)は電気化学的に酸化されると電子を解放するが、これらの電子は外部負荷回路を介して空気電極へ流れることにより電流を発生させる。

このようにして、酸化剤(O)と改質済み燃料(RF)の電気化学的反応によ

り外部負荷回路に電位差が生じるが、この電位差は閉回路に電子と酸素イオンの連続流を維持するため有用な電力を取り出すことができる。改質済み燃料ガスが水素ガスまたは一酸化炭素ガスである場合に生じる電気化学的反応は、下記の式(5)、(6)及び(7)で示すことが可能である。

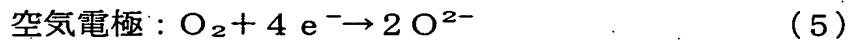


図3-6を参照してさらに詳説すると、図示のようにガス拡散隔壁を有する実施例の改質器兼仕切り(60)は、好ましくは3つの部分よりなる構成である。改質器兼仕切り(60)は、改質可能燃料混合物(RFM)を改質するための中空の改質チャンネル(64)を含む内側ボード(62)、改質前の未改質燃料(F)が燃料電池スタック内に漏れるのを防止するために内側ボードの外壁(66)をほぼ囲む気密の隔壁(76)、及び内側ボードとガス隔壁のサブアセンブリを収容する外側ボード(78)よりなる。改質器の内側ボード(62)には、改質用触媒(80)を含む改質空洞部(64)が設けられている。内側ボード(62)はまた、燃料電池(26)の閉端部(54)の近くに配置すべき改質可能燃料混合物(RFM)の入口または開端部(68)と、燃料電池(26)の開端部(52)の近傍に配置すべき閉端部(70)とを備えている。改質可能燃料混合物の入口(68)内には燃料用立ち管(72)が配置されている。この管は空洞部(64)内を閉端部(70)近くまで延びるため、改質可能燃料混合物(RFM)は内側ボード(62)の内部を燃料電池の開端部近くの内側ボード閉端部(70)近くへ流れ、そこで方向転換して内側ボードの空洞部(64)を、改質用触媒(80)を含浸または被覆させた内壁と接触して流れた後、改質済み燃料(RF)として燃料電池(26)へ送られる。

内側ボード(62)は気密の隔壁(76)内に囲まれている。気密の隔壁(76)は、ニッケル箔、インコネル箔またはニッケル系の他の適当な合金製の箔等で形成することが可能である。気密の隔壁(76)は、改質可能燃料混合物(RFM)の入口(68)を除いて内側ボード(62)を本質的に取り囲む。気密の

隔壁は、未改質燃料ガス（F）が内側ボードの内部を通して燃料電池スタック内に漏れるのを阻止するために用いる。気密の隔壁（76）はまた、改質可能燃料

混合物の入口（68）の所を除いて気密の隔壁と改質器ボードのサブアセンブリを取り囲む外側ボード（78）により囲まれている。かくして、各改質器兼仕切り（60）は、改質可能炭化水素燃料混合物（RFM）、例えば使用済み燃料と混合した天然ガスの入口（68）を有する内側改質器（62）、改質用触媒（80）を含む内側ボード内の改質チャンネル、改質済み燃料（RF）を燃料電池への燃料入口ポート（50）へ差し向ける改質済み燃料出口（88）、ガス隔壁手段（76）、及び燃料電池（26）に対して露出した外側分離ボード（78）を有する。

改質器として働く内側ボード（62）は、好ましくはほぼ矩形であり、ボード内に中空チャンネル、好ましくは矩形のチャンネルを形成するに十分な厚さを有する多孔質アルミナ絶縁ボードで形成することが可能であり、このチャンネルは燃料電池（26）の開端部近くのボードの開端部（68）から燃料電池の軸方向長さに沿って燃料電池（26）の開端部（52）近くの開端部（70）まで延びる。内側ボードの内部の空洞部（64）は、好ましくはニッケルまたは白金のような改質用触媒物質（80）を被覆するか含浸させたもので、改質可能炭化水素燃料混合物の改質表面を提供する。改質用触媒物質及び触媒物質をアルミナボード上に含浸させる方法についてのさらに詳細な説明は、全体が本願明細書の一部を形成するものとして引用する米国特許第4,898,792号(Singh, et al.)に記載されている。

改質器の内側ボード（62）は気密の隔壁（76）によりほぼ取り囲まれているが、この隔壁は燃料電池スタック（16）内において内側ボードの外壁（66）と燃料電池（26）の間のガス拡散隔壁を提供する。ガス隔壁（76）は、改質用空洞部の開端部（68）の所を除き改質器の内側ボード（62）の外壁（66）を包む金属箔で形成することができる。金属箔としては、ニッケルまたはインコネルの箔等が使用可能である。金属箔は、内側ボードの表面を介して燃料電池へ無視できない漏れが発生するのを防止する隔壁として働く。

仕切りの外側ボード(78)もまた、好ましくはほぼ矩形の多孔質アルミナ絶縁ボードで製作可能である。外側ボード(78)の幅と高さは燃料電池スタックとほぼ同じであり、内部に形成される中空チャンネル、好ましくは矩形チャンネル

ルが内側ボード(62)と金属箔のガス隔壁(76)のサブアセンブリを収容するに十分な厚さを有する。外側ボード(78)は、燃料電池スタック(16)の直ぐ下の燃料分配ボード(40)により支持される。外側ボードは好ましくは、内側ボード(62)と金属箔ガス隔壁(76)のサブアセンブリのための中空チャンネル(90)を含んでおり、その間隙(92)は内側ボード(62)と外側ボード(78)の熱膨張を吸収するに十分な大きさであり、かくして発電装置及び改質器の運転時に熱応力によりこれらのボードに発生する構造的損傷を著しく減少することができる。金属箔ガス隔壁(76)は局部的に変形することによりアルミナボードの熱膨張を吸収できる。外側ボード(78)はまた、燃料電池スタック(16)から改質チャンネル(64)及び改質可能ガス混合物(RFM)へ適正な熱伝達を行わせるに必要な全壁厚の不足分を補うと共に、燃料電池スタック内の隔離された燃料電池または電池束と金属箔の間の電氣的絶縁を与えることによって燃料電池及び発電装置が短絡するのを防止する。

金属箔隔壁のようなガス隔壁層を含む未改質燃料混合物の改質器兼仕切り(60)を、その壁を介してガスが漏れるのを防止する手段として使用すると、燃料セルスタック内の燃料電池間または電池束間に内蔵型炭化水素燃料改質器を有する高温固体酸化物電解質燃料電池発電装置において多数の利点を得られる。吸熱改質反応に要する熱伝達は、内蔵型であるが燃料電池スタック内には配置されない他の炭化水素改質器と比較すると、燃料電池スタック内に過大な温度勾配を発生させずに行われる。従って、過大な温度勾配の発生を防止するために燃料電池への空気の流量を増加する必要はなく、このためポンプ電力条件を軽減できるという望ましい利点を得られる。これはまた、改質器兼仕切りに生じる過大な熱応力を和らげると共に発電装置の長期の運転期間においてその構造的健全性を向上させることができる。さらに、改質器兼仕切りボードを介する未改質ガス混合物の漏れが著しく減少するため、発電装置の運転が長期にわたる場合でも燃料電池

及び発電装置の他の構成要素に炭素やすすが形成されるのを防止できる。すすの形成が減少すると、ガス搬送路が詰まったり電氣的短絡が生じたりする問題がなくなる。加えて、改質器兼仕切りボードの表面に沿う局所的な温度勾配に耐える能力とボードの表面間の温度勾配に生じる応力に起因するボードの反りに耐える

能力が一段と向上する。

例えば、100キロワット高温固体酸化物燃料電池発電装置に用いる改質器兼仕切りの外側ボード(78)の形状は矩形であり、通常、燃料電池スタックの長さは約60インチ、幅は約34インチ、厚さは約1.75インチである。改質器兼仕切りの内側ボード(62)及び金属箔ガス隔壁(76)はその全体幅及び厚さが僅かに小さいため、内側ボードとガス拡散壁は外側ボードにより完全に覆われている。内側ボード(62)は通常、長さが約59インチ、幅が約32インチ、厚さが約1インチであるか、或いは同じ全体寸法を有する幾つかの部品に分割されている。内側ボードを外側ボードから隔てる金属箔(76)は、厚さが約0.001乃至0.005インチ(1.0乃至5.0ミル)である。内側ボードとガス拡散壁のサブアセンブリと外側ボードの間の間隙(92)の厚さは、約0.050インチ(50ミル)である。改質チャンネルを形成する矩形の中空チャンネル(64)は開端部(68)から内側ボードの長さに沿って延びて、反対端部からボード内部の長さ方向にある距離だけ隔たった閉端部(70)で終端するため、その長さは内側ボードよりも僅かに短い。中空チャンネル(62)は、未改質炭化水素燃料を改質するための触媒物質を従来法により含浸したもので、燃料改質表面を提供する。

改質器兼仕切りボード(60)を製造するには、種々の方法がある。その一例として、アルミナ絶縁材料を長さ方向に沿って半分に分割してボード内面を露出させることにより、改質器兼仕切りの内側ボード(62)と外側ボード(78)を作るやり方である。各半分をその内面に沿い一端から他端に近い所まで機械加工して矩形のチャンネルを形成し、それぞれ開端部及び閉端部を備えた内部チャンネル(64)、(90)となるようにする。内側ボードを構成する各半分の外面の幅方向に凹部を機械加工により形成し、内側ボードを組み立てた後インコネ



ルの帯状片を凹部内にセットし、その位置で溶接することができる。金属箔は改質チャンネル内に改質可能ガス混合物を閉じ込めるために使用するため、内側ボードの各半分の接合箇所を気密にする必要はない。これは、内側ボードを漏れないようにシールを装着するこれまでの時間のかかる且つ信頼性の低い接着作業を不要にする。金属箔の層はニッケルまたはインコネルのシートで形成すること

が可能であり、これを内側ボードの周りに折り曲げた後、側部の継ぎ目に沿って溶接を行う。金属箔の補強は、溶接線においてニッケル帯状片を2層にして溶接のための適当な材料とすることにより可能である。その補強は、それらを取扱う際重ねてスポット溶接した後、TIG溶接により継ぎ目を気密にする。また、継ぎ目を抵抗、電子ビームまたはレーザー溶接することも可能である。外側ボードを接合するか、好ましくは端縁部に沿って絶縁またはセラミックのクリップを用いることにより結合することができる。

発電装置(10)の運転時における本発明の改質器兼仕切り(60)の動作を例示的に説明すると、空気のようなガス状酸化剤(O)を酸化剤入口(38)を介して供給し、約500℃乃至700℃の温度と大気圧より僅かに高い圧力で酸化剤供給導管(56)へ流入させる。酸化剤(O)は、ハウジング(12)に流入させる前に送風器(図示せず)に結合した熱交換器によるなどして従来方法により加熱することがオプションとして可能である。導管(56)の酸化剤(O)は燃焼室(18)を熱交換関係で通過する際、燃焼済み排気ガス(E)が解放するかなりの熱により約800℃乃至900℃の温度にさらに加熱される。酸化剤(O)はその後、燃料電池(26)の内部を長さ方向に延びる酸化剤回路を流れるにつれて、電気化学的反応時に発生する熱の大部分を吸収し、ほぼ1000℃にさらに加熱される。その熱の小部分は燃料が吸収する。

酸化剤(O)はその後、燃料電池(26)の底部にある閉端部(54)内に排出され、燃料電池の活性長さに沿って内側空気電極(30)と接触する。次いで、燃料電池(26)内に放出された酸化剤(O)は流れ方向を反転し、燃料電池の活性長さに沿う内側空気電極(30)において電気化学的に反応することにより、燃料電池の開端部(52)に近づくに従い酸素を消耗させる。その後、消耗

した、即ち使用済みの酸化剤 (SO) は、電池の開端部 (52) を介して燃焼室 (18) 内へ流出する。使用済み酸化剤 (SO) は使用済みまたは消耗した燃料 (SF) と結合して燃焼し、消耗した燃料 (SF) の一部は多孔質隔壁 (42) を透過して高温の燃焼済み排気ガス (E) となる。この排気ガスは、燃焼済み排気ガス出口チャンネル (44) を介して発電装置から排出される。燃焼済み排気ガス (E) は発電装置から排出される前に、該装置の他の構成要素 (図示せず)、例えば改

質室の壁と熱交換関係を保つように送られるため、別の熱源となる。

本発明では、改質すべき炭化水素燃料ガス (F) として、メタン、エタン、プロパン等を含む炭化水素ガス、ナフサのような気化石油留分、エチルアルコールのようなアルコール類、好ましくは天然ガス、即ちほぼ85%のメタンと10%のエタンで残部がプロパン、ブタン、窒素の混合物を使用することができる。これらの改質可能燃料は、未改質供給燃料 (F) として新鮮な炭化水素燃料入口 (36) 内へ供給する。炭化水素供給燃料ガス (F) は、混合室 (48) において水蒸気及び／または炭酸ガスと混合されると改質可能燃料混合物 (RFM) を形成する。この発電装置は、水蒸気及び／または炭酸ガスを使用済み (SF) から燃料ガスへ供給することができる。図示のごとく、外側燃料電極 (28) の軸長に沿って形成される高温の消耗した使用済み燃料 (SF) の大部分は、使用済み燃料ガス循環チャンネル (46) へ向かう。上述したように、使用済み燃料 (SF) の残部は燃焼室 (18) に流入して使用済み酸化剤 (O) と結合して燃焼し、新鮮な酸化剤 (O) を予熱する。使用済み燃料循環チャンネル (46) は発電室 (16) から流れ出た後、イジェクタ、ジェットポンプ、アスピレータのような混合室 (48) で新鮮な炭化水素燃料 (F) 内に送り込まれ、それと結合する。このため、少なくとも水蒸気及び／または炭酸ガスを含む使用済み燃料の一部が再循環することになり、改質に要する酸素種が得られる。また必要であれば、炭化水素の有意な分解なしに改質のための余分の酸素種が得られる。使用済み燃料と新鮮な炭化水素燃料の混合物は、燃料電池 (26) を含む燃料電池スタック (16) への途上において改質される改質可能燃料混合物 (RFM) を提供する

本発明において、改質可能燃料混合物(RFM)は燃料電池スタック内の個々の燃料電池(26)の間または電池束(22, 24)の間に位置する改質室兼仕切り(60)の改質室を通過する。改質器兼仕切り(60)の作動時、燃料立ち管(72)を使用する場合、改質可能燃料混合物(RFM)はこの管の入口から流入して頂部へ到達した後、改質器兼仕切り(60)の閉端部(70)の近くへ流出し、流れ方向を反転させ、改質器兼仕切りの内部チャンネル(64)を流れる間、改質用触媒を含浸させた内側ボードの内壁と接触する。このため、改質可能燃料混合物は改質器の内側ボードの活性長さに沿って改質される。単一の隔壁(74)を用いる場合、改質可能燃料混合物(RFM)は入口から隔壁の一方の側に沿い、その隔壁と仕切りの壁により形成されたチャンネル内を流れて隔壁の頂部に到達した後、頂部で流れ方向を反転させ、隔壁と仕切りのもう一方の壁により形成されたチャンネルを流れることにより改質される。

改質器兼仕切り(60)の改質物質を通過した後の改質済み燃料混合物は、改質済み燃料(RF)として改質器兼仕切り(60)を発電室(16)と連結する燃料分配プレナム(88)の一連のポート(50)を通過する。改質済み燃料(Rf)は発電室に流入した後、燃料電池の外側燃料電極(28)の上を流れる。燃料電池(26)の燃料電極(28)の上を流れる改質済み燃料(RF)は、その活性長さに沿って燃料電池(26)を流れる際、外側燃料電極(28)において電気化学的に反応することにより、多孔質隔壁(42)及び使用済み燃料循環チャンネル(46)に近付くにつれて消耗する。消耗した使用済み燃料(SF)はその後、多孔質隔壁(42)を介して燃焼室(18)内へ、また上述したように使用済み燃料循環チャンネル46へ排出される。

約800℃乃至1200℃、典型的には1000℃の温度で運転される発電装置の電気化学的反応全体により、水素(H<sub>2</sub>)及び一酸化炭素(CO)のような改質済み燃料ガス(RF)は直流電気エネルギー、熱及び水蒸気に変換される。燃料電池の内側へ送られる酸化剤(O)は、空気電極-電解質界面において電気化学的に還元される。酸化剤を還元するための電子は空気電極から供給される。

発生した酸素イオンは、固体酸化物電解質の結晶構造の一部となり、電解質を通じて電解質－燃料電極界面へ移動する。燃料電池の外側を流れる燃料は、電解質－燃料電極界面において電気化学的に酸化される。酸化された燃料は搬出される。解放された電子は、外部回路を空気電極へ向けて流れることにより直流電流を発生させる。高温固体酸化物燃料電池発電装置の電気化学的動作のさらに詳細な説明については、全体として本明細書の一部を形成するものとして引用する米国再発行特許第28,792号(Ruka)を参照されたい。

図7及び8に示す本発明の第2の実施例において、改質器兼仕切り(100)は、所望の寸法の改質器兼仕切りを形成するために積み重ねた複数の軸方向部分

(102)として提供される。各軸方向部分(102)は、改質用触媒(106)を含浸させた中空の内側ボード(104)、気密の隔壁(108)、及び中空の外側ボード(110)を備えている。例えば金属箔である気密の隔壁層は、漏れがないようにするという条件をこのアルミナボードアセンブリから取り除くことにより、所望であれば、ボードアセンブリを幾つかの軸方向部分に分けて製造することを可能にする。このため、ボードを2半分に分割せずに内側及び外側ボードの内部ポケットを従来型工具を用いる機械加工により形成することが可能になり、従ってボードの各半分を結合するのが不要となる。これらの各軸方向部分(102)は高さが12乃至20インチ、幅がほぼ24インチであり、改質器兼仕切りが任意の高さになるように必要に応じて積み重ねればよい。これらの各軸方向部分は、内部の改質チャンネルに隣接する位置で組み立てた状態の各部分の長さ全体を延びるセラミックの結合ロッド(112)により整列定位置に保持することが可能である。

図9に示す改質器兼仕切りの第3の実施例では、ガス隔壁を取り囲む別の構成が示されている。この実施例の改質器兼仕切り(200)は矩形で、長さ方向に沿い複数の部分(202)に分割されている。各部分はその内面の長さ方向に沿って中空(204)で、2つの開端部(206)、(208)を有するため、矩形の導管を構成する。中空の領域(204)には、改質用触媒(210)が含浸してある。半分に分割した金属の包囲部材のようなガス隔壁(212)は、ガス

の漏れを防止する隔壁として働く。ガス隔壁(212)はインコネルのような耐高温性金属で製造可能である。ガス隔壁(212)の各半分の内部には、軸方向に分割した改質器兼仕切り(200)の各部(202)が所望の高さになるように積み重ねた状態で配置されている。インコネルのセパレータ(214)が、積み重ねた改質器兼仕切りとガス隔壁のアセンブリを形成する一半分内に設けられる。2つの各半分のアセンブリを矩形のベローズ(216)により連結する。これらのベローズは、インコネルのセパレータ(214)と同じ高さにあり、アルミナ絶縁ボードとは異なるインコネルのガス隔壁の膨張を吸収する働きがある。ベローズは好ましくは、セパレータに機械加工により形成した解放部(図示せず)の方に曲がるようにする。さらに、このベローズはガス隔壁の中央面に剛性を与

える効果を有するため、熱による歪みの抑制に役立つ。ガス隔壁の外表面は、燃料電池スタックの短絡を防止するためにアルミナペーパー218により絶縁されている。

図10に示す改質器兼仕切りの第4の実施例では、ガス隔壁の別の構成例が示されている。この実施例の改質器兼仕切り(300)は矩形で、軸方向において複数の部分(302)に分割されている。各部分(302)はその内側表面の長さ方向に中空であり、中空チャンネル(304)を形成する。中空チャンネル(304)は改質用触媒(306)を含浸してある。その後、軸方向の各部分(302)を金属包囲体のようなガス隔壁(308)の内側で積み重ねる。ガス隔壁(308)はインコネルのような耐高温性金属で形成できる。ゆがみが生じる傾向を減少するべく側部に剛性を与えるため、必要に応じて、ガス隔壁(308)及び改質器兼仕切りの横断面長さ方向に結合ワイヤまたは棒(310)を通した後、ガス隔壁の外表面に溶接してもよい。結合ワイヤまたは棒(310)を用いる場合、結合部材が相対的な熱膨張差により移動できるように改質器兼仕切りにスロット(312)を設ける。発電装置の燃料電池スタックに取り付けると、ガス隔壁は底部の方に膨張できるが、その部分ではガス隔壁の下端部が燃料分配ボード(40)と改質器兼仕切りアセンブリの間に残る割れ目内に侵入するか或いは電

池閉端部の位置決めボードの頂部と同一平面のところまで延びる。いずれの場合でも、熱膨張による燃料の漏れは僅かであり、燃料電池スタックの底部に閉じ込めることができる。インコネルのガス隔壁をアルミナペーパー（314）またはスプレーを施したセラミックのような他の絶縁材料で絶縁することにより、燃料電池スタックの短絡を防止することができる。

最後の2つの実施例では共に、ガス隔壁が燃料を閉じ込めるため、多孔質のアルミナボードを介して燃料が漏れるか拡散する問題が著しく軽減する。

次に、本発明による改質器兼仕切りの構成及び動作を例示するための以下の例を考慮すると、本発明はさらに明らかになるであろう。

#### 例

100キロワットのSOFC発電装置に用いる改質器兼仕切りを図1-6に示

す設計に従って構成し、その機械的健全性、改質能力及び製造容易性を評価した。改質器兼仕切りは、機械加工したアルミナボード材から形成した内側ボードアセンブリ、最終製品である内側ボードアセンブリの周りに配置した厚さ約0.005インチのニッケル箔内張、内側ボードと金属箔サブアセンブリの周りに配置する、アルミナボードを機械加工して形成した外側ボードよりなるものであった。内側ボードを機械加工してガスポケットを形成したが、このポケットは平坦なシートの端縁部にストリップ材料を固定するなどして他の手段により形成することも可能であった。ボードを触媒を保持する溶液内に浸漬することにより、内側ボードアセンブリ内に触媒を担持させた。マンドレルの周りに箔の内張を巻いて、その継ぎ目を抵抗溶接により溶接することにより気密の封止部を形成した。その後、予想される運転圧力でテスト前の漏れチェックを10回行った結果、その継ぎ目には漏れは存在しないことが分かった。外側ボードアセンブリを機械加工により2つの部分として形成した後、内側ボードアセンブリの上に組み込んだ。

組み立てを終った改質器兼仕切りを、燃料電池スタックの環境をシミュレーションする改質器兼仕切りテスト装置内に配置した。このボードに長時間（1500時間）メタンの豊富な燃料を供給し、排出される燃料ガスの組成を測定した。

100キロワットの発電装置にとって予想される運転ポイントを表わすために燃

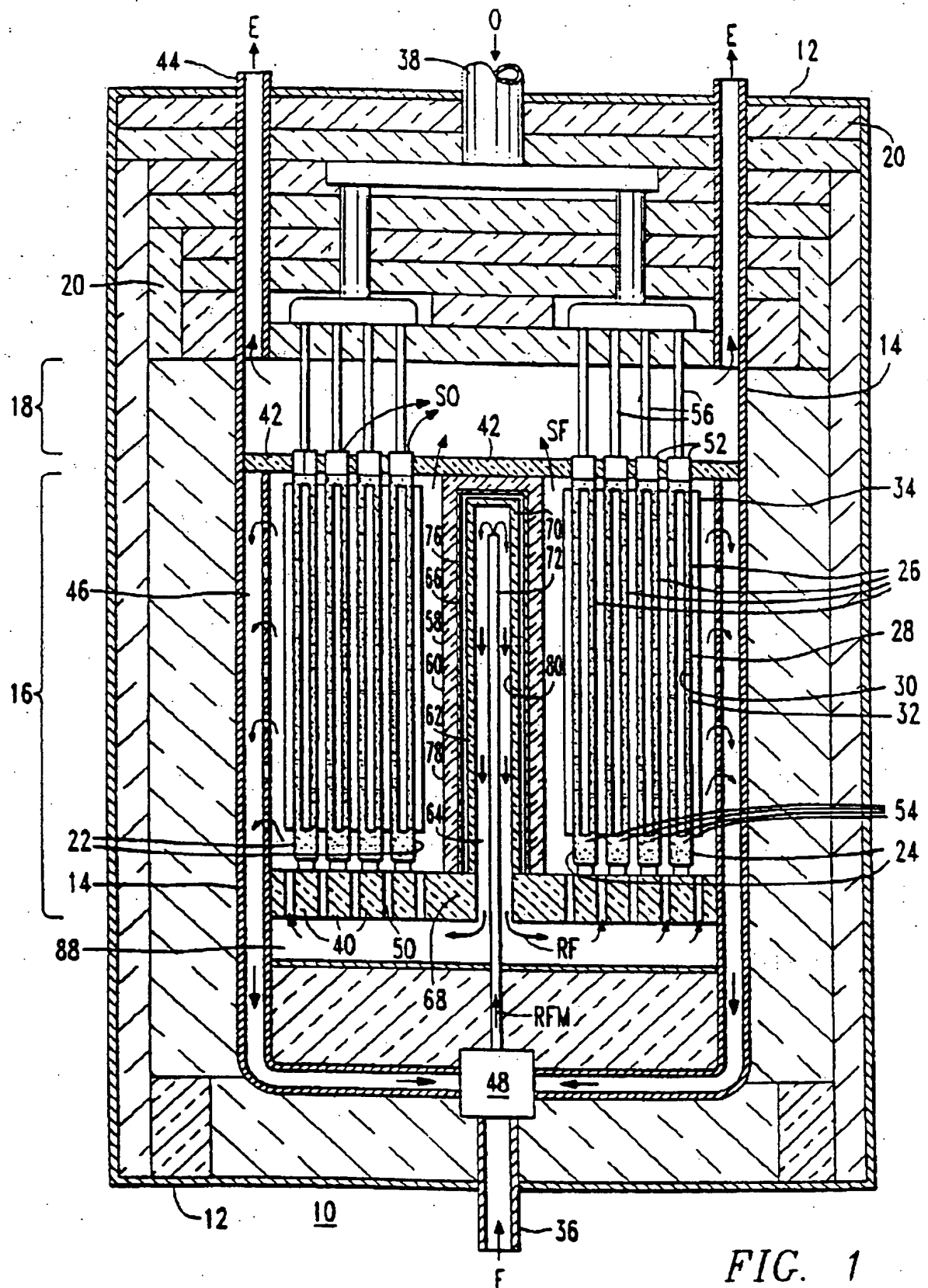
料の流量を変化させた。

これらのテストにより判明したことは、総合改質効率が受入れ可能であり、小型発電装置に用いる現在の外部取付け型改質器を用いたもので得られる値よりも優れているということである。改質効率は約85%乃至90%の範囲で変化し、高い効率は低流量の場合（最小電力のシュミレーション）に得られた。後で視覚により点検した結果、箔の内張の表面には酸化物も腐食も発見されず、明白な機械的クリープも見られなかった。この後、箔の内張をチェックしたが、依然として漏れは認められなかった。材料のサンプルを採取・分析することにより、箔の微小構造を検査した。得られた結果に基づくこの改質器兼仕切りの設計は、現在及び将来のSOFC発電装置に用いるためのものである。

本発明を上述の実施例に関連して説明したが、当業者にとっては別の変形例及び設計変更が明らかであろう。本発明は特に言及した実施例に限定されるもので

はなく、排他的権利を請求する本発明の精神及び範囲の評価に当たっては上記説明でなく後記の請求の範囲を参照すべきである。

【図 1】





【図 2】

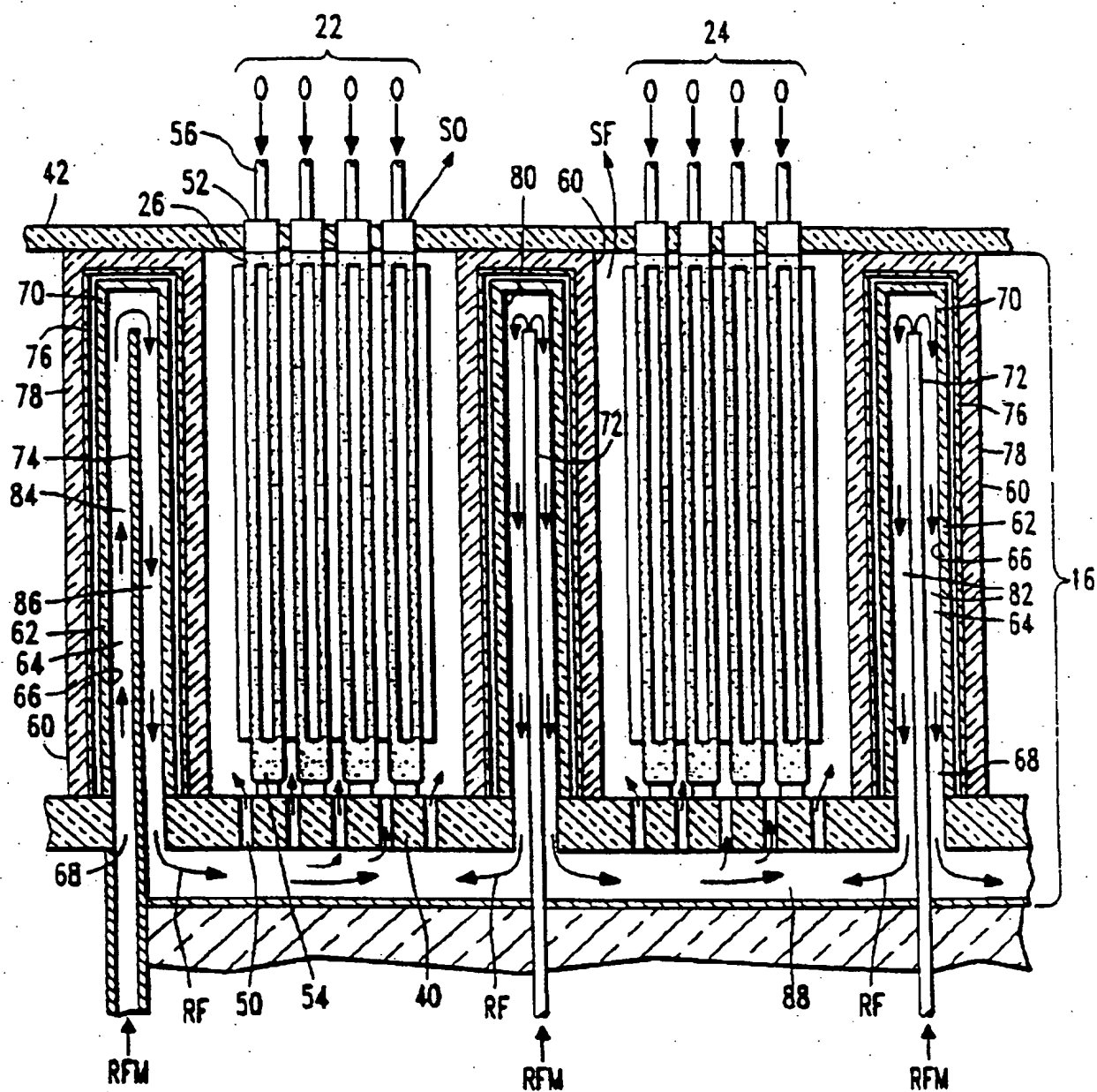
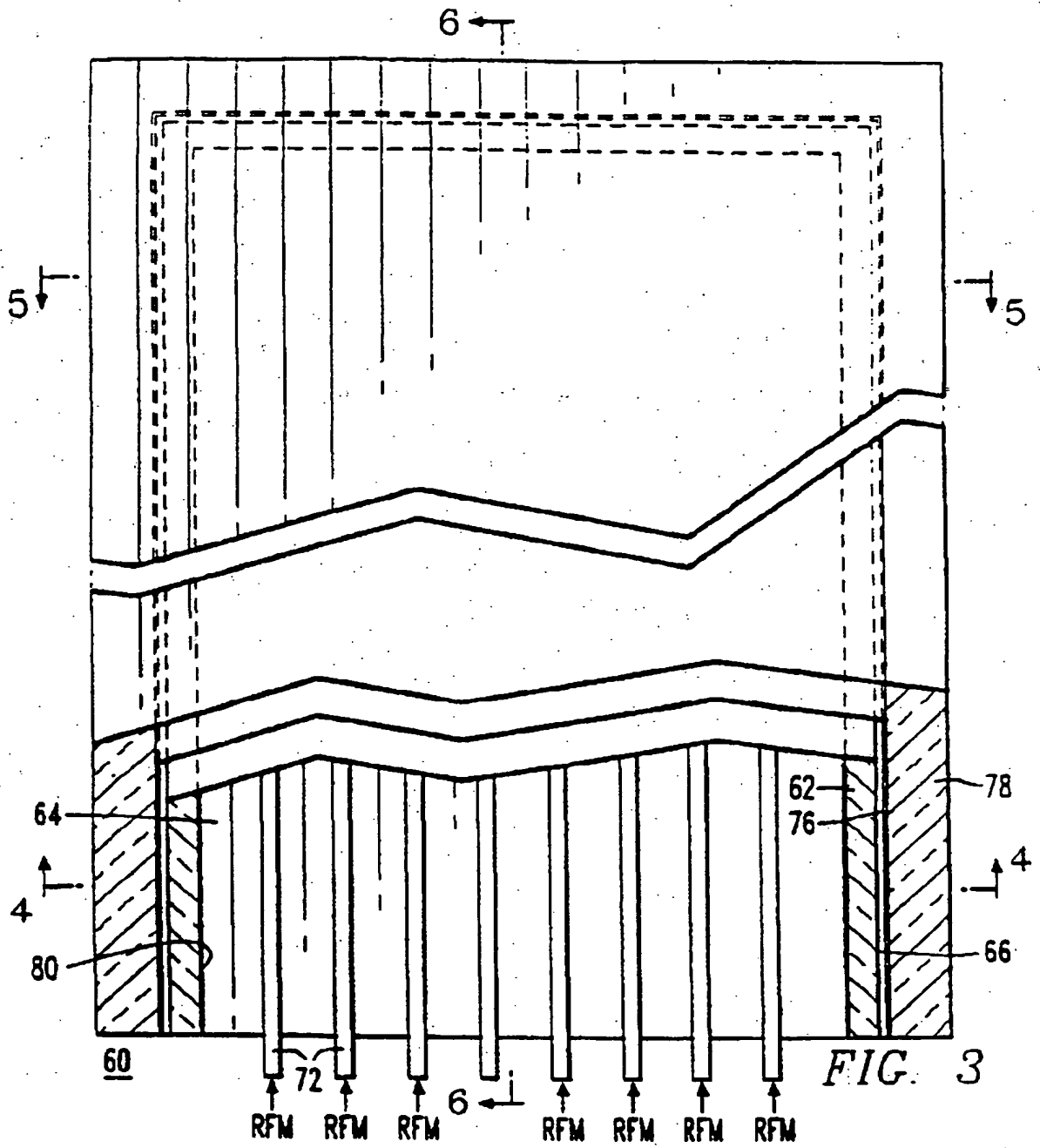
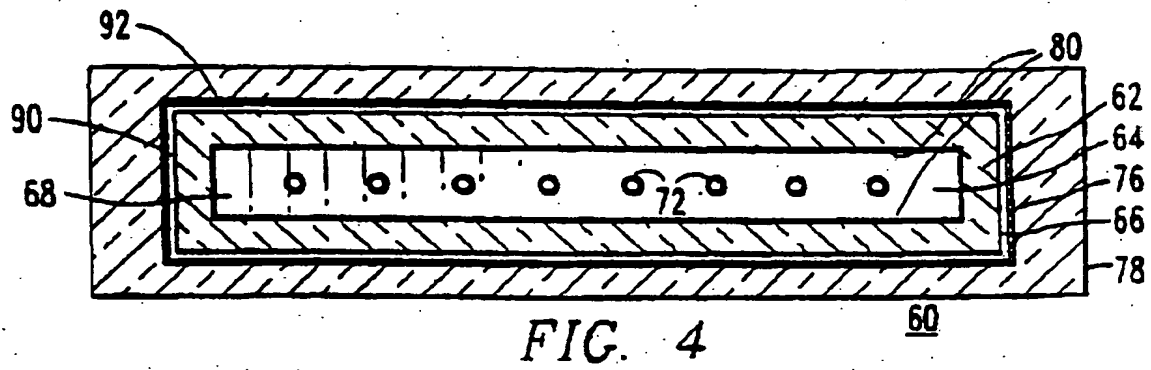


FIG. 2

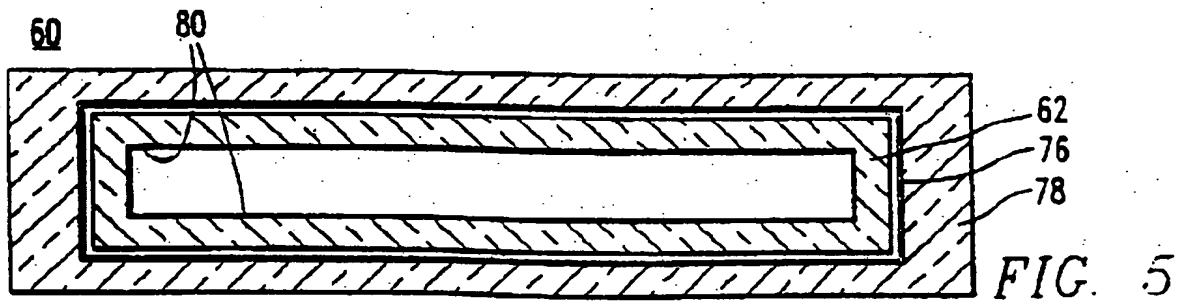
【図3】



【図4】



【図5】



【図6】

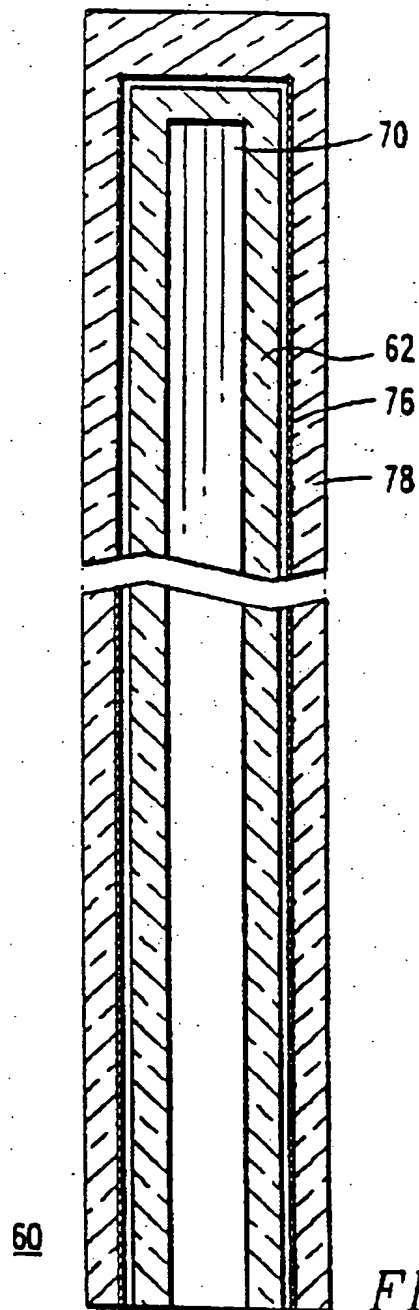


FIG. 6

【図 7】

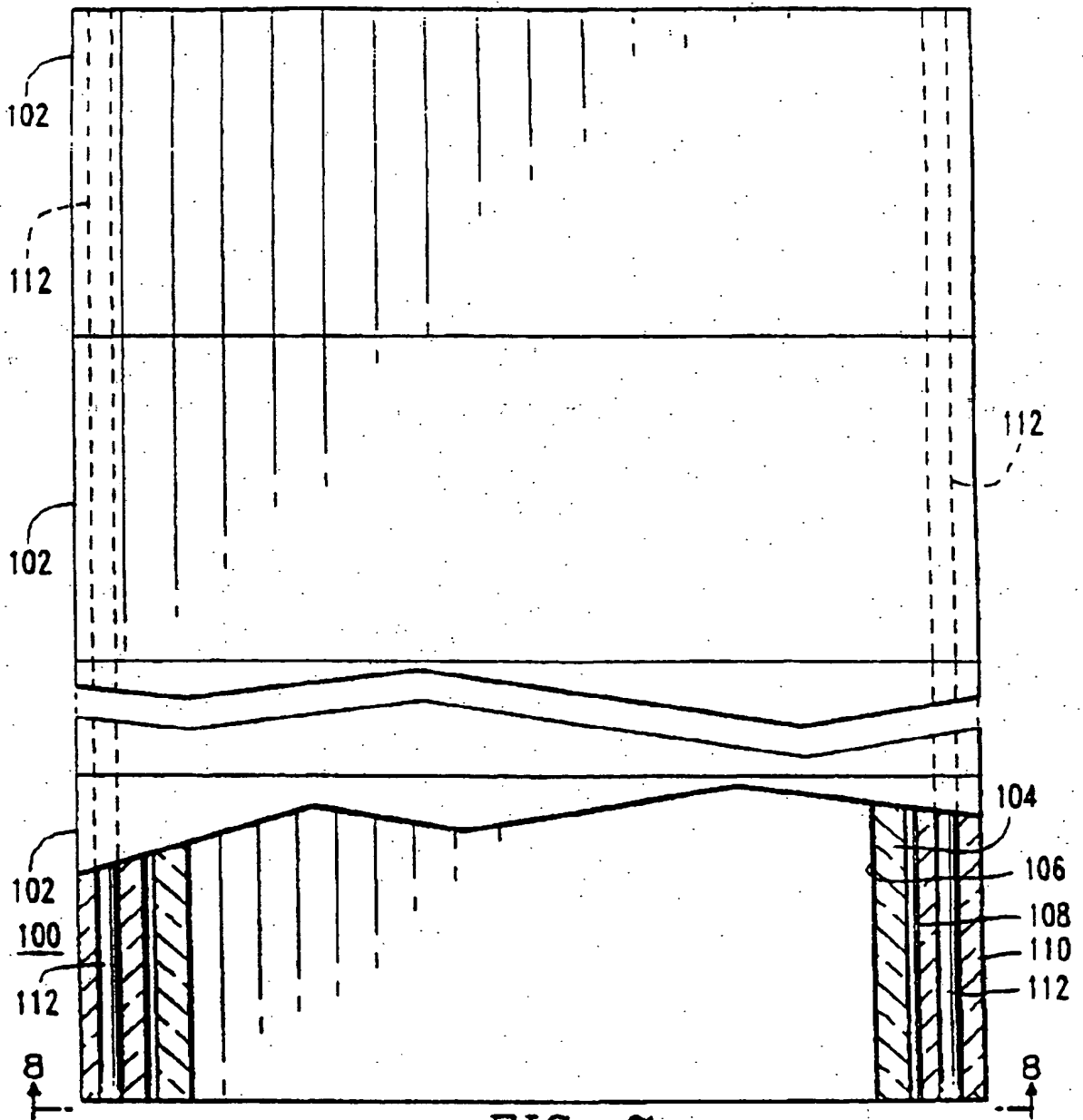
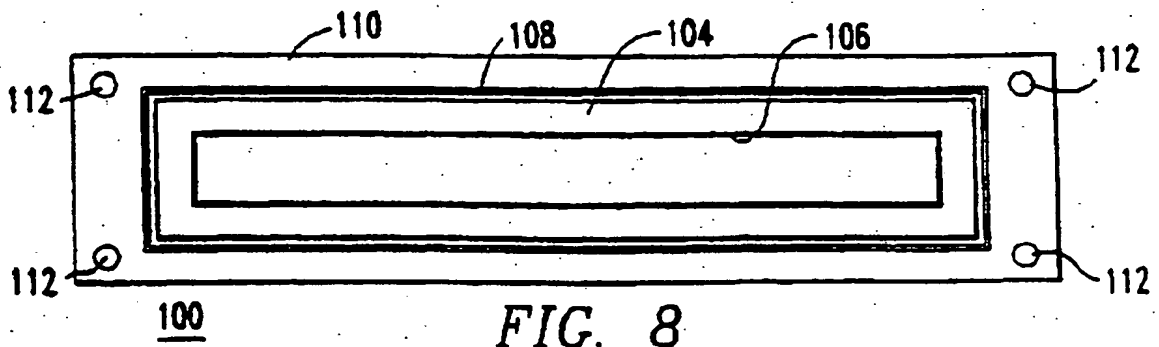


FIG. 7

【図8】



【図9】

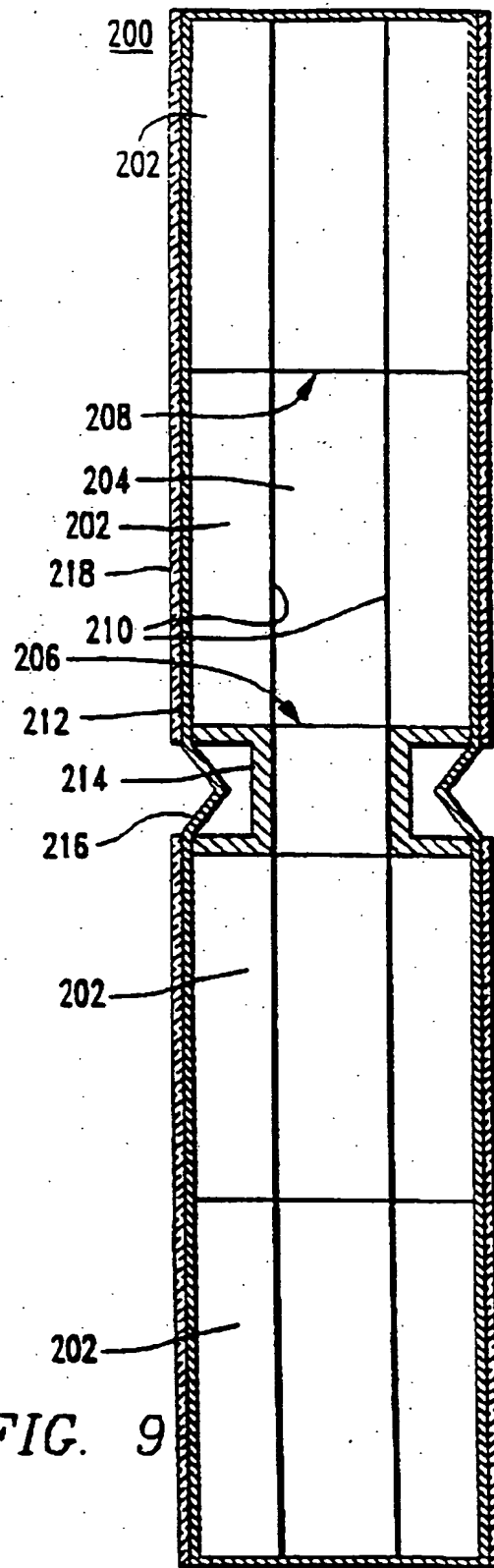


FIG. 9





【手続補正書】特許法第184条の8第1項

【提出日】平成10年9月17日(1998. 9. 17)

【補正内容】

国特許第4, 128, 700号は、燃料電池発電装置の外部における燃料の改質に関するものである。発電装置の内部で炭化水素燃料を改質しようとする試みがあるが、これは特に、燃料改質の適温が固体酸化物燃料電池の運転温度である約600℃乃至1200℃、さらに詳細には約800℃乃至1050℃に近い約900℃乃至1000℃の範囲にあるという理由で望ましいことである。

米国特許第4, 374, 184号(Somers)は、この問題を、管状の各燃料電池に意図的に形成した不活性端部上で内部改質を行うことで解決している。この方法によると、燃料電池スタック内の過大な温度勾配が幾分緩和される。しかしながら、この方法は燃料電池スタック内の燃料電池活性領域を著しく減少させる。米国特許第4, 729, 931号(Grimble)は、燃料電池の発電室の近傍で燃料電池スタックの外部にある触媒室内に配置した、細かく砕いたニッケルまたは白金のような炭化水素燃料改質用触媒充填物により内部改質を行っている。この構成は、炭化水素燃料ガスをノズルに供給して水蒸気及び炭酸ガスを含む使用済み循環燃料ガスと混合し、この改質可能なガス混合物を発電室の側部に沿ってそれと熱交換関係で搬送して改質の行われる触媒充填物内へ導いた後、改質済みガスを発電室内の燃料電池燃料プレナムへ送る。米国特許第4, 808, 491号(Reicnner)は、改質用熱源として発電装置の排気ガスを用いて内部改質を行うが、この排気ガスは燃料電池スタックの外部であるが燃料電池の閉端部直下の改質用触媒と熱交換関係で送られる。

上述した内部改質法によって、燃料電池スタック及び改質器内に過大な温度勾配を発生させることなく吸熱改質反応に要する熱を移送させるのは依然として解決困難な課題である。温度勾配が過大になるのを防止するためには、燃料電池へい送る空気の流量を燃料との電気化学的反応に要する量以上に増加させなければならない。この熱移送の問題の1つの解決法が米国特許第4, 983, 471号(Reicnner et al.)に記載されているが、この特許では改質可能な燃料混合物用のチャンネルが燃料電池スタックの軸方向長さを延びている。高温の使用済み

循環燃料ガスと改質すべき新鮮な炭化水素燃料を混合した改質可能な燃料混合物がこのチャンネルに送り込まれ、入口ポートを通して燃料電池スタック内に入り燃

料(SF)の一部は、使用済み燃料循環チャンネル(46)を介して混合室(48)へ送られ、そこで新鮮な炭化水素燃料(F)と結合することにより改質可能な燃料混合物(RFM)となるが、これにより燃料改質反応に必要な酸素種が供給されると共に未改質炭化水素燃料(F)の改質が容易になる。使用済み燃料循環チャンネルは、インコネルのような耐高温・耐酸化性金属で形成可能である。燃料分配プレート(40)の間には、改質済み燃料ガスを燃料電池スタック(16)内の燃料電池(26)の燃料電極(28)へ送るための発電室入口ポート(50)が離隔して設けられている。

好ましくは管状で、細長い燃料電池(26)は、燃料分配プレート(40)と多孔質隔壁(42)の間の発電室内を延びる。各燃料電池(26)は燃焼室(18)内にある開端部52と、燃料分配プレート(40)近くの発電室(16)内にある閉端部(54)を有する。燃料電池(26)の開端部には、酸化剤立ち管のような酸化剤導管(56)がその中を延びる。

かかる燃料電池発電装置(10)において、発明者等は、改良型改質器兼分離器(「改質器兼仕切り」とも呼ぶ)を用いることにより、燃料改質前に未改質燃料が燃料電池スタック内にほとんど漏れしないようにして、燃料電池(26)の燃料電極(28)に接触する前の新鮮な炭化水素燃料ガス(F)を燃料電池スタック(16)の内部で改質して改質済み燃料(RF)にする新しい方法を発見した。本発明の改質器兼仕切りは、燃料電池スタック内の燃料電池(26)または電池束(22, 24)の隔壁となるだけでなく他の発電装置構成要素を支持すると共に改質器兼仕切りボードの細孔による燃料電池スタック(16)への未改質燃料ガス(F)の望ましくない漏れが実質的になくなるようにする。この改質器兼仕切りの構成は、そのボードの熱膨張による望ましくない構造的な劣化を実質的に防止する。

本発明の1つの構成によると、電池束(22, 24)を形成する好ましくは管

状で、細長い複数の燃料電池（26）が多孔質隔壁（42）と燃料分配プレート（40）の間を延びる細長い隔壁（60）により隔離される。これらの隔壁（58）は適当な厚さの多孔質アルミナボードの中実片から製造可能であり、燃料電池スタックの区画を形成し、発電装置内の構造的健全性を与えるように燃料電池能力が一段と向上する。

例えば、100キロワット高温固体酸化物燃料電池発電装置に用いる改質器兼仕切りの外側ボード（78）の形状は矩形であり、通常、燃料電池スタックの長さは約60インチ、幅は約34インチ、厚さは約1.75インチである。改質器兼仕切りの内側ボード（62）及び金属箔ガス隔壁（76）はその全体幅及び厚さが僅かに小さいため、内側ボードとガス拡散壁は外側ボードにより完全に覆われている。内側ボード（62）は通常、長さが約59インチ、幅が約32インチ、厚さが約1インチであるか、或いは同じ全体寸法を有する幾つかの部品に分割されている。内側ボードを外側ボードから隔てる金属箔（76）は、厚さが約0.001乃至0.005インチ（1.0乃至5.0ミル）である。内側ボードとガス拡散壁のサブアセンブリと外側ボードの間の間隙（92）の厚さは、約0.050インチ（50ミル）である。改質チャンネルを形成する矩形の中空チャンネル（64）は開端部（68）から内側ボードの長さに沿って延びて、反対端部からボード内部の長さ方向にある距離だけ隔たった閉端部（70）で終端するため、その長さは内側ボードよりも僅かに短い。中空チャンネル（64）は、未改質炭化水素燃料を改質するための触媒物質を従来法により含浸したもので、燃料改質表面を提供する。

改質器兼仕切りボード（60）を製造するには、種々の方法がある。その一例として、アルミナ絶縁材料を長さ方向に沿って半分に分割してボード内面を露出させることにより、改質器兼仕切りの内側ボード（62）と外側ボード（78）を作るやり方である。各半分をその内面に沿い一端から他端に近い所まで機械加工して矩形のチャンネルを形成し、それぞれ開端部及び閉端部を備えた内部チャンネル（64）、（90）となるようにする。内側ボードを構成する各半分の外面の幅方向に凹部を機械加工により形成し、内側ボードを組み立てた後インコネ

ルの帯状片を凹部内にセットし、その位置で溶接することができる。金属箔は改質チャンネル内に改質可能ガス混合物を閉じ込めるために使用するため、内側ボードの各半分の接合箇所を気密にする必要はない。これは、内側ボードを漏れないようにシールを装着するこれまでの時間のかかる且つ信頼性の低い接着作業を不要にする。金属箔の層はニッケルまたはインコネルのシートで形成すること

能燃料混合物は改質器の内側ボードの活性長さに沿って改質される。単一の隔壁(74)を用いる場合、改質可能燃料混合物(RFM)は入口から隔壁の一方の側に沿い、その隔壁と仕切りの壁により形成されたチャンネル内を流れて隔壁の頂部に到達した後、頂部で流れ方向を反転させ、隔壁と仕切りのもう一方の壁により形成されたチャンネルを流れることにより改質される。

改質器兼仕切り(60)の改質物質を通過した後の改質済み燃料混合物は、改質済み燃料(RF)として改質器兼仕切り(60)を発電室(16)と連結する燃料分配プレナム(88)の一連のポート(50)を通過する。改質済み燃料(RF)は発電室に流入した後、燃料電池の外側燃料電極(28)の上を流れる。燃料電池(26)の燃料電極(28)の上を流れる改質済み燃料(RF)は、その活性長さに沿って燃料電池(26)を流れる際、外側燃料電極(28)において電気化学的に反応することにより、多孔質隔壁(42)及び使用済み燃料循環チャンネル(46)に近付くにつれて消耗する。消耗した使用済み燃料(SF)はその後、多孔質隔壁(42)を介して燃焼室(18)内へ、また上述したように使用済み燃料循環チャンネル46へ排出される。

約800℃乃至1200℃、典型的には1000℃の温度で運転される発電装置の電気化学的反応全体により、水素( $H_2$ )及び一酸化炭素(CO)のような改質済み燃料ガス(RF)は直流電気エネルギー、熱及び水蒸気に変換される。燃料電池の内側へ送られる酸化剤(O)は、空気電極-電解質界面において電気化学的に還元される。酸化剤を還元するための電子は空気電極から供給される。発生した酸素イオンは、固体酸化物電解質の結晶構造の一部となり、電解質を通過して電解質-燃料電極界面へ移動する。燃料電池の外側を流れる燃料は、電解質-燃料電極界面において電気化学的に酸化される。酸化された燃料は搬出される

。解放された電子は、外部回路を空気電極へ向けて流れることにより直流電流を発生させる。高温固体酸化物燃料電池発電装置の電気化学的動作のさらに詳細な説明については、全体として本明細書の一部を形成するものとして引用する米国再発行特許第28,792号(Ruka)を参照されたい。

図7及び8に示す本発明の第2の実施例において、改質器兼仕切り(100)は、所望の寸法の改質器兼仕切りを形成するために積み重ねた複数の軸方向部分

#### 請求の範囲

1. 各々が外側電極(28)、内側電極(30)及び両電極間の固体酸化物電解質(32)を有する、電気接続された細長い複数の電気化学的燃料電池(26)よりなる電気化学的燃料電池発電装置(10)であって、燃料電池の間にはそれらを隔離する細長い仕切り(58)が設けられ、少なくとも1つの細長い仕切り(60)は長さ方向の一部(64)において中空であって、中実の細長い壁(62)内において開端部(68)と閉端部(70)を有し、その中空の部分は改質用触媒物質(80)と、改質可能燃料混合物入口チャンネル(72)と、燃料電池への改質済み燃料出口チャンネル(88)とを含み、中空の仕切りはさらに改質可能燃料混合物ガスが仕切りを通して燃料電池へ漏れるのを防止する手段を含み、このガス漏れを防止する手段は、改質可能燃料混合物入口の所を除き金属箔の層(76)により取り囲まれた中空の隔壁を構成する中実の細長い壁(62)よりなって、中空の仕切り—金属箔サブアセンブリを形成する電気化学的燃料電池発電装置(10)。

2. 中空の仕切り—金属箔サブアセンブリはさらに細長いハウジング(78)との間の空間(92)により取り囲まれており、そのハウジングは長さ方向に中空(90)であって、中実の細長い壁内で開端部と閉端部とを有し、中空部分は中空の仕切り—金属箔中空ハウジングアセンブリを形成する中空の仕切り—金属箔サブアセンブリを形成する請求項1の装置。

3. 燃料電池(26)は管状で閉端部(54)と開端部(52)を有し、中空の仕切り(60)は燃料電池の開端部近くの閉端部(70)と、燃料電池の閉端部近くの開端部(68)を有し、改質可能燃料混合物入口(72)は燃料電池の

閉端部近くの中空の仕切りの開端部内に延びており、改質可能燃料混合物の入口は発電装置の改質可能燃料混合物チャンネル（48）を中空仕切り内の少なくとも1つの改質可能燃料混合物チャンネル（72）と、燃料電池への改質済み燃料出口を有する戻りチャンネル（88）とに接続する、請求項2の装置。

4. 中空の仕切り（60）及び中空のハウジング（78）は多孔質アルミナボードで製造されている、請求項2の装置。

5. 金属箔（76）はニッケル箔またはインコネル箔の少なくとも1つよりなる請求項2の装置。

6. 改質用触媒物質（80）は白金またはニッケルのうちの少なくとも1つよりなる請求項2の装置。

7. 改質用触媒物質（80）は中空の仕切りの壁（62）の内壁上またはその内部にある請求項6の装置。

8. 改質可能燃料混合物入口チャンネルは中空の仕切り内に位置する細長い隔壁（74）により形成されている請求項2の装置。

9. 改質可能燃料混合物入口チャンネルは中空の仕切り内に位置する少なくとも1つの中空の導管（72）より形成されている請求項2の装置。

10. 中空の仕切り（100）は各々が長さ方向で中空であって中実の細長い壁内で開端部を有する複数の軸方向セグメント（102）よりなり、中空の部分は改質用触媒物質（106）を含み、各軸方向セグメントは軸方向に積み重ねられて、長さ方向の一部において中空であって中実の細長い壁内で開端部及び頂部の閉端部を有する最も頂部の軸方向セグメントで終端し、中空の部分は改質用触媒物質を含み、最も底部の軸方向セグメントは軸方向セグメントの中空部分の長さ方向に延びる改質可能燃料混合物入口チャンネルと、燃料電池への改質済み燃料出口チャンネルを含み、各軸方向セグメントはさらに軸方向に分割された金属箔の層（108）と、中空のハウジング（110）よりなる請求項2の装置。

11. ガスの漏れを防止する手段は、軸方向に分割された各部分（202）を積み重ねた細長い中実の壁部を有する中空の金属包囲体（212）を形成する中空の仕切り（200）の中実の細長い壁よりなり、中空の金属包囲体は燃料電池

の開端部近くの閉端部と、燃料電池の閉端部近くの開端部を有し、改質可能燃料混合物入口は燃料電池の閉端部近くの中空の仕切りの開端部内に延び、改質可能燃料混合物入口は発電装置内の改質可能燃料混合物チャンネルを中空の仕切り内の少なくとも1つの改質可能燃料混合物チャンネルと燃料電池への改質済み燃料出口を有する戻りチャンネルに接続し、さらに中空の金属包囲体は細長い中実の壁に沿って絶縁材料(218)により絶縁されている請求項1の装置。

12. 中空の金属の包囲体(212)は軸方向に分割された少なくとも2つの軸方向の金属包囲体部分、即ち上方の包囲体部分と下方の包囲体部分よりなり、

下方の包囲体部分は2つの開端部を有し、上方の包囲体部分は開端部と上方の閉端部を有し、さらに下方の包囲体部分の開端部は上方の包囲体部分の開端部に金属製の軸方向セパレータ(214)とベローズ(216)とにより接続され、さらに金属包囲体部分は絶縁材料(218)により絶縁されている請求項11の装置。

13. 金属包囲体部分(212)はインコネルにより製造されている請求項11の装置。

14. 絶縁材料(218)はアルミナペーパーと溶射されたセラミックの少なくとも1つよりなる請求項11の装置。

15. 軸方向に分割された中空の仕切り(302)は結合棒(312)より結合される請求項11の装置。

16. 高温固体酸化物燃料電池発電装置(10)であって、各々が外側燃料電極(28)、内側空気電極(30)及びこれら2つの電極間に介在する固体酸化物電解質(32)を有する電氣的接続され平行に設置された複数の細長い燃料電池(26)を含み、電氣的接続された1または2以上の燃料電池の束(22)、(24)を備えた細長い発電室(16)を含むハウジング(12、14)と、内側空気電極への新鮮な酸化剤ガス入口(38)と、燃料電極への新鮮な炭化水素燃料入口(36)と、発電室に接続され使用済み燃料ガスを使用済み酸化剤ガスと結合させて燃焼させる燃焼室(18)と、燃焼室を大気に接続する少なくとも1つの燃焼済み排気ガスチャンネル(44)と、発電室を新鮮な炭化水素ガス入

口からの新鮮な炭化水素供給燃料と使用済みガスとを結合して改質可能燃料混合物を形成させる混合室(48)と接続する少なくとも1つの使用済みガス再循環チャンネル(46)とよりなり、改質可能燃料混合物チャンネル(48)は、混合室から発電室の軸方向に、燃料電池間に位置してそれらを分離する少なくとも1つの細長い仕切り(58)内へ延び、少なくとも1つの細長い仕切り(60)は長さ方向部分(64)において中空であって、中実の細長い壁(62)内で開端部(68)と閉端部(70)を有し、中空の部分は改質用触媒物質(80)と、燃料電池への改質済み燃料出口チャンネル(88)を有し、中空の仕切りはさらに改質可能燃料混合物入口チャンネルの所を除いて、金属箔の層(76)と、距

離(92)だけ離隔した細長いハウジング(78)とにより取り囲まれ、ハウジングは長さ方向において中空(90)であって、中実の細長い壁内で開端部と閉端部を有し、中空の部分は中空の仕切り(62)と金属箔(76)を有する発電装置。

17. 燃料電池(26)は、ドーブ済み亜マンガ酸ランタンよりなる空気電極(30)と、イットリアまたはスカンジウムをドーブしたジルコニアよりなる固体酸化物電解質(32)と、ニッケル-ジルコニアサーメットよりなる燃料電極よりなる請求項16の装置。

18. 金属箔の層(76)はニッケル箔またはインコネル箔の少なくとも1つよりなり、中空の仕切り(62)及び中空のハウジング78は共に多孔質アルミナボードよりなり、改質用触媒(80)は中空の仕切りの中空のチャンネルの壁の上に含浸されている請求項17の装置。



## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No. PC/US 96/15146
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 H01M8/06 H01M8/24 H01M8/02		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 H01M		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US,A,5 082 751 (REICHNER PHILIP) 21 January 1992 cited in the application see column 3, line 29 - line 38 see column 3, line 64 - column 4, line 14 see column 4, line 35 - line 39; claims 1-3,6,8,11; figure 1	1
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 115, no. 6, 12 August 1991 Columbus, Ohio, US; abstract no. 53404j, YAMANOCHI H. ET AL: "Solid-electrolyte fuel-cell modules" XP000283950 see abstract & JP,A,02 306 546 (FUJIKURA LTD) 19 December 1990 --- -/-	1
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reasons (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "A" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 22 January 1997		Date of mailing of the international search report 24.01.97
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016		Authorized officer D'hondt, J

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International Application No  
 PC/US 96/15146

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	GB,A,1 109 058 (GAZ DE FRANCE) 10 April 1968 see page 3, line 82 - line 130; figure 3 ---	1
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 95, no. 010 & JP,A,07 272741 (MITSUBISHI HEAVY IND LTD), 20 October 1995, see abstract ---	1
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 493 (E-697), 22 December 1988 & JP,A,63 207054 (FUJIKURA LTD), 26 August 1988, see abstract ---	
A	FR,A,1 585 403 (COMPAGNIE GÉNÉRALE D'ELECTRICITÉ) 23 January 1970 see page 9, paragraph 1; claim 6 ---	1
A	EP,A,0 673 074 (ROLLS ROYCE PLC) 20 September 1995 see column 6, line 34 - column 7, line 1; figures 1,2,5 see column 9, line 21 - line 25 see column 13, line 16 - line 32 see column 22, line 28 - line 41 ---	1
A	EP,A,0 264 688 (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 27 April 1988 see column 14, line 11 - line 35; figure 3 -----	

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
 information on patent family members

 b International Application No  
**PCT/US 96/15146**

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US-A-5082751	21-01-92	CA-A- 2051525	19-04-92
		DE-D- 69118088	25-04-96
		DE-T- 69118088	28-11-96
		EP-A- 0481813	22-04-92
		JP-A- 4334871	20-11-92
-----			
GB-A-1109058		BE-A- 674915	11-07-66
		DE-A- 1596107	26-08-71
		FR-A- 1443903	22-09-66
		NL-A- 6600472	15-07-66
-----			
FR-A-1585403	23-01-70	NONE	
-----			
EP-A-0673074	20-09-95	CA-A- 2142757	20-08-95
		JP-A- 7272742	20-10-95
		US-A- 5486428	23-01-96
-----			
EP-A-0264688	27-04-88	US-A- 4728584	01-03-88
		CA-A- 1285018	18-06-91
		DE-A- 3771827	05-09-91
		JP-A- 63110560	16-05-88
-----			